

博 士 論 文

温間圧延法で接合したステンレス鋼とアルミニウムとの金属クラッド板の開発とその接合機構に関する研究

金沢大学大学院自然科学研究科
機械科学専攻

学籍番号 (1624032004)

奥井 利行

主任指導教員名 潮田 浩作

提出年月 2019 年 1 月

温間圧延法で接合したステンレス鋼とアルミニウムとの 金属クラッド板の開発とその接合機構に関する研究

Development of metal clad sheet with stainless steel and aluminum joined by
warm rolling method and study on the bonding mechanism of the clad sheet.

2019 年 1 月

奥井利行

目次

第 1 章 緒言

1.1 本研究の背景	1
1.2 ステンレス／アルミニウムクラッド板	2
1.2.1 調理用器物向けクラッド板 (16Cr-SUS / Al)	2
1.2.2 感温磁性材料クラッド板 (Fe-Ni-Cr / Al / 16Cr-SUS)	6
1.2.3 ディスクブレーキ用クラッド板 (SUS403 / Al / SUS403)	10
1.3 ステンレス／アルミニウムクラッド板の接合方法	11
1.4 金属クラッド板の接合機構に関する従来の研究と課題	16
1.5 本研究の目的と構成	24
第 1 章の参考文献	26

第 2 章 クラッド板製造のための圧延接合条件の検討

2.1 緒言	28
2.2 圧延法によるクラッド接合強度への影響因子について	29
2.3 界面すべり量の実用表現について	30
2.4 有限要素法による異種金属間の摩擦発熱量の評価	34
2.5 ワークロールと材料間の摩擦係数がクラッド接合強度におよぼす影響について	38
2.5.1 実験方法	38
2.5.2 結果と考察	39
2.6 結言	44
第 2 章の参考文献	45

第 3 章 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの圧延クラッド材の接合界面 微細構造

3.1 緒言	46
3.2 実験方法	48
3.3 実験結果	52
3.3.1 熱処理条件にともなうピール強度変化	52
3.3.2 接合界面近傍の光学顕微鏡組織観察	54
3.3.3 接合界面の TEM 観察	60

3.4 考察	65
3.4.1 熱処理による原子拡散の進行と金属間化合物の生成	65
3.4.2 接合界面に見られる中間層の構造について	68
3.4.3 中間層の生成原因と熱処理による再構成	72
3.5 結言	74
第3章の参考文献	75
第4章 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの圧延クラッド材の熱処理による ピール強度変化と強度発現機構	
4.1 緒言	76
4.2 実験方法	78
4.3 実験結果	83
4.3.1 ピール試験後のはく離面の SEM 観察結果	83
4.3.2 ピール試験後のはく離面に見られた薄片状付着物の TEM 観察結果	88
4.4 考察	92
4.4.1 熱処理に伴う界面破壊挙動の変化について	92
4.4.2 熱処理に伴うピール強度の向上とその強度発現機構について	98
4.5 結言	103
第4章の参考文献	104
第5章 クラッド板の接合強度の評価方法について	
5.1 緒言	105
5.2 クラッド薄板を対象とした接合強度評価方法	106
5.3 垂直引張試験による評価試験	110
5.3.1 実験方法	111
5.3.2 実験結果と考察	114
5.4 結言	117
第5章の参考文献	118
第6章 総括	
6.1 本研究で得られた結論	120
6.2 本研究の総括と今後の課題	122
謝辞	123

第 1 章 緒言

1.1 本研究の背景

金属クラッド材料は、材料特性の異なる異種金属を積層し一体化することによって、一方の金属の欠点を他方が補うとともに、各構成金属の特長を同時に利用することを可能とし、単一金属材料に比べて高機能化や新機能付与を実現した機能材料である。金属クラッド材料の形態としては、上記の構成および機能を実現するものであれば、溶接構造体やめっき品などを含めてクラッド材料の一形態とみなすことも可能と考えられる。しかし、一般的には当該構造体の主たる面積を占める面の一部分もしくは全部を覆う形で異種金属が積層一体化されたものをクラッド材料と称することが多いようである。一例として JIS G 0601 クラッド鋼の試験方法¹⁾には、クラッドの定義として「ある金属を他の金属で全面にわたり被覆し、かつその境界面が金属組織的に接合しているもの。特に金属クラッドともいう。ただし、めっきを除く」と記されている。このような金属クラッド材料は、古くは日本刀の製造技術として知られるほか、海外では硬貨の製造技術として利用されてきた歴史を持つ。さらに近年では、厚板や薄板など金属クラッド板のほかに、金属クラッドパイプ^{2),3)}、金属クラッド棒線⁴⁾などでも多くの実用例が報告されている^{5),6)}。

これら金属クラッド材料のうち、板状のものは、パイプや棒線に比べて積層一体化のプロセスに汎用性があるため、種々の金属を組み合わせた金属クラッド板を比較的容易に実現できるほか、その表裏面で異なる金属種を露出させることも可能であることから、多様な機能性材料が実現されている。さらに金属クラッド板を薄板コイルとして製造することによって、高い生産性が得られるとともに、実使用上の汎用性も高まることから、工業的に高い価値を有する製品が得られる。このような金属クラッド板の代表的用途として、熱間圧延法で製造されたステンレスクラッド鋼に代表される刃物用材料⁷⁾や化学プラント用構造材に用いる厚板がある。また、冷間圧延法で製造されたバイメタル材料や電極接点材料などに代表される各種機能性材料⁸⁾、加熱下での真空圧延法で接合された継ぎ手用材料⁹⁾なども広く利用され

ている．さらに特筆すべき用途として，ステンレス鋼とアルミニウムとを接合した金属クラッド板^{10),11)}が挙げられる．すなわち，本金属クラッド板の代表的な適用例は，1990 年台以降に電磁調理器の普及とともに利用が拡大し定着した調理用器物への利用である．

1.2 ステンレス／アルミニウムクラッド板

1.3 節で詳述するように，ステンレス鋼とアルミニウムとを接合した金属クラッド板は，温間圧延法によって製造される．このように製造される金属クラッド板は，母材としてアルミニウムを用いることを基本とするが，合わせ材には，目的に応じて種々の機能を有するステンレス鋼を用いることができるほか，ステンレス鋼以外の材料を選択することも可能である．ステンレス鋼以外の材料を用いた例としては，例えば，純チタンと純アルミニウムとのクラッド板¹²⁾が挙げられ，ステンレス鋼と同等の強度を持ちながら軽量で，深絞り加工性にも優れるチタン材料を合わせ材に用い，また陽極酸化処理を用いた発色加工を利用することによって，各種筐体など意匠性部材への用途に適したクラッド板が開発されている．

本節ではまず，調理用器物向けクラッド板として代表的な，フェライト系ステンレスとアルミニウムとのクラッド板について，その特徴を述べた後に，合わせ材としてステンレス鋼もしくはこれに類似した Fe-Ni-Cr 系合金を用いることによって新機能を実現した金属クラッド板の製品開発例を 2 例挙げ，その特性を紹介する．

1.2.1 調理用器物向けクラッド板 (16Cr-SUS / Al)

調理用器物（鍋や釜，フライパンなど）に求められる基本的な機能として，食品安全性の面からは耐食性や耐傷付き性が，また実使用の面からは調理の均熱性や耐焦げ付き性を向上させる熱回りの良さや，取扱いにおける軽量性などが求められる．ステンレス鋼とアルミニウムとを積層したクラッド板は，Fig. 1-1 に示すように，ステンレス鋼の優れた耐食性および強度特性と，アルミニウムの軽量性および優れ

た熱伝導性の全ての特長を合わせ持つ材料として実現することができるため、調理用器物の素材として優れた基本機能を有している。また、その利用形態に応じて二層や三層などの積層形態や厚み構成を適宜設計したり、特定の面に適切な機能材料を配置したりして、付加機能を実現することが可能である。その代表例として、上記のクラッド板を器物に成形した際に、その外面にあたる面の材質として、磁性を有するフェライト系ステンレス鋼を配することにより、優れた誘導加熱特性を実現したクラッド板がある。このクラッド板は、電磁調理器や IH 炊飯器の普及に連れて 1990 年ごろから急速に利用が進んだ^{4),5)}。

Figure 1-2 には、電磁調理器用の器物として金属クラッド板を使用した際に得られる効果の例を示す。この試験では、鍋の外面側からフェライト系ステンレス鋼と純アルミニウムとオーステナイト系ステンレス鋼の三層を配した金属クラッド板を成形した鍋と同時に、比較材としてフェライト系ステンレス鋼の単一板から成形した鍋を準備し、各々を市販の電磁調理器を用いて空焚き試験を行なっている。磁性を持つフェライト系ステンレス鋼は誘導加熱用の発熱体として有用であるが、熱伝導性に劣るため、フェライト系ステンレス鋼の単一板から成形した鍋では、底面の IH コイル直上部分のみが局所加熱されて、調理中に焦げ付きを生じる恐れがある。一方で中間に熱伝導性に優れるアルミニウムを配した三層の金属クラッド板を用いた場合には、底面の IH コイル直上部分での局所加熱が防止されたばかりでなく、IH コイルの無い側面部分にも熱が有効に伝わる様子が観察された^{6),7)}。

このように誘導加熱特性と熱伝導性に優れた二層ないしは三層の金属クラッド板が、温間圧延接合法によって薄板コイルとして量産され、電磁調理器用の器物や IH 炊飯器の内釜の素材として実用化されている。その接合方法の詳細については、1.3 節で述べる。

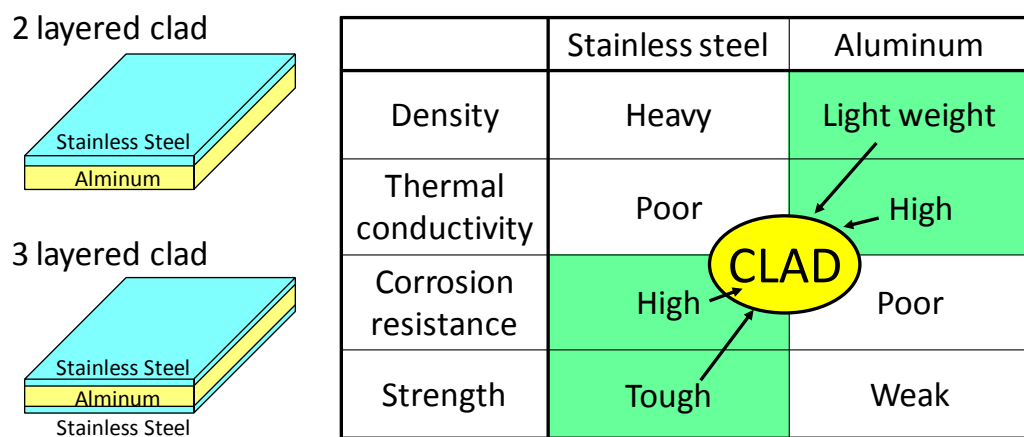


Fig. 1-1 Realization of clad sheet with high performances by laminating different kinds of metal.¹¹⁾

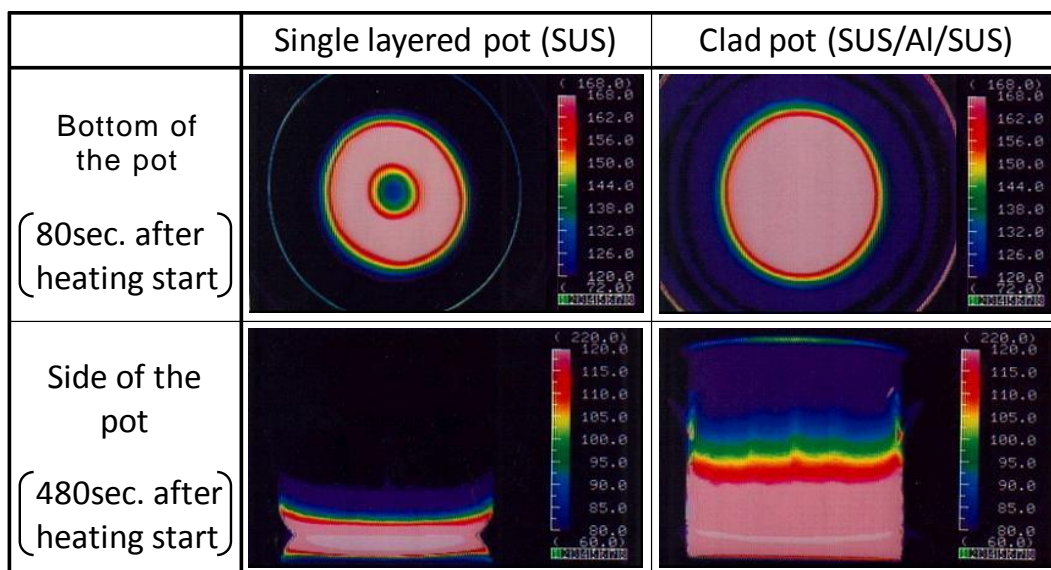


Fig. 1-2 Surface temperature distribution of an empty pot in the heating test using IH cooker. ¹¹⁾

1.2.2 感温磁性材料クラッド板 (Fe-Ni-Cr / Al / 16Cr-SUS)

電磁調理器は熱源として火炎を用いないため、火災安全性の高い調理器具として普及している。しかし一方で、高火力であるが故に使用条件によっては調理油が発火する危険性も指摘されており¹⁵⁾、特に高齢者の住む住宅や、高層建築物内の厨房などにおいて、対策が望まれていた。

電磁調理器から発生する交流磁場中に金属材料などの導電体が存在すると、材料には電磁誘導によって渦電流が生じる。この渦電流は表皮効果によって IH コイルに近い側(鍋外面)の表層部に集中して流れ、その際のうず電流浸透深さ(δ)は、 $\delta = \sqrt{\rho / (\pi \cdot f \cdot \mu)}$ によって表される^{13),16)}。ここで ρ は発熱体の体積抵抗率、 f は交流磁場の周波数、 μ は発熱体の透磁率である。電磁調理器で用いられる通常の専用器物では、発熱体として透磁率 μ の高い強磁性体であるフェライト系ステンレスや普通鋼などを用いることで、うず電流浸透深 δ を浅く制御し、発熱効率を高めている。

ここで発熱体として、使用温度の近傍にキュリー点を有する Fe-Ni 合金や Fe-Ni-Cr 合金を配し、中間層には常磁性体であって比透磁率 μ_s が 1 に近いアルミニウムを配した金属クラッド板を用いると、Fig. 1-3 に示すように Fe-Ni-Cr 合金のキュリー点未満の温度では、うず電流が電気抵抗率の大きな発熱層にのみ流れて効率的にジュール発熱が生じる。一方で、キュリー点を超える温度まで加熱されると、うず電流が電気抵抗率の小さなアルミニウムにも流れるようになるためにジュール発熱が大幅に抑制される。つまり発熱体のキュリー点を、目的とする温度の近傍で適切に調整することによって、自ら過剰発熱防止機能を発揮する電磁調理器用器物を実現することができる。このような機能を実現する専用器物として、鍋外面側の発熱層には 280 °C にキュリー点を持つ Fe-40%Ni を配し、中間層に純アルミニウムと、鍋の内側には耐食性に優れるオーステナイト系ステンレス鋼とを積層した三層クラッド板を開発した¹⁶⁾。このクラッド板は天ぷら鍋およびフライパンに成型加工され、松下電器産業から商品化された。

同様の過剰発熱防止機能は、発熱体のキュリー点を適切に調整することで、調理用油の発火対策以外の目的にも広く応用が期待される。しかし、Fe-Ni 合金の Ni

組成のみによってキュリー点を変化させた場合、その他の特性、特に熱膨張係数も同時に変化するため、クラッド板のバイメタル変形を誘発してしまう可能性がある。そこで Fe-Ni に Cr を加えた Fe-Ni-Cr の 3 元合金を対象とし、キュリー点 (T_c) と熱膨張係数(β)におよぼす化学組成の影響を検討した。Fe-Ni-Cr 合金は、その化学組成を変化させることによってキュリー点を常温から数百度の範囲で調整することができるため、 T_c 制御の目的に適した材料である。一方で、Ni 量=40~47%, Cr 量 \leq 6%の範囲においては、 T_c および β におよぼす Ni 含有量の影響がいずれも正の相関を示すのに対し、Cr 含有量の影響は T_c について負、 β について正の相関を示すことを確認した (Fig. 1-4)。この結果から各々の相関式を作成して所望の T_c と β を与え、Ni および Cr 含有量について解くことにより、目的とする材料設計が可能となった。すなわち、相関式(1), (2)に所望の T_c と β を与え、Ni および Cr 含有量について解くことにより、目的とする化学組成が得られる¹⁷⁾。

$$\left. \begin{array}{l} [\%Ni=40\sim47, \%Cr<2\%] \\ T_c = -501.4 - 21.7 \times \%Si - 9.38 \times \%Mn + 19.8 \times \%Ni \\ [\%Ni=40\sim47, \%Cr \geq 2] \\ T_c = -475.6 - 21.7 \times \%Si - 9.38 \times \%Mn + 19.8 \times \%Ni - 17.0 \times \%Cr \end{array} \right\} \dots (1)$$

$$\begin{array}{l} [\%Ni=40\sim47\%, \%Cr \leq 6\%] \\ \beta = -26.9 + 0.74 \times \%Ni + 0.80 \times \%Cr \quad \dots (2) \end{array}$$

本結果を利用して、IH 装置の被加熱材として用いた場合に所望の温度で自動発熱停止機能を発現し、さらに熱変形の少ないクラッド板を得ることが可能となった。

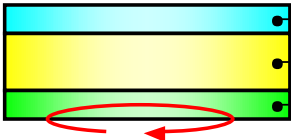
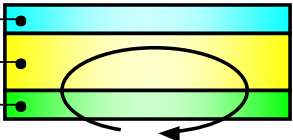
Temperature	Below Curie point	Above Curie point
Induced current flow	 <p>Eddy current flows only through Fe-Ni or Fe-Ni-Cr layer.</p>	 <p>Eddy current flows mainly through the aluminum layer.</p>
Joule heat	High	Low

Fig. 1-3 Schematic drawings showing mechanism how to control temperature of induction heater by optimizing Curie point of Fe-Ni-Cr alloy.

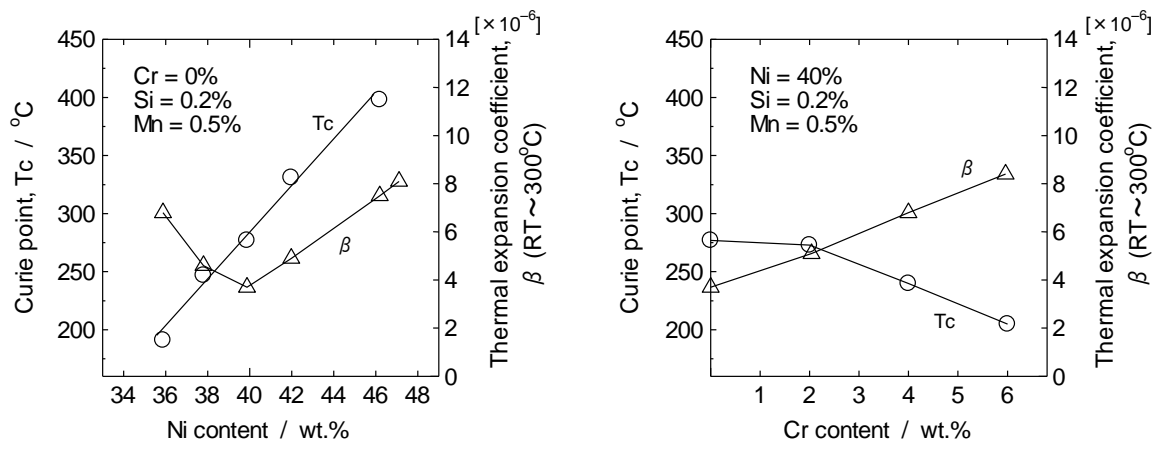


Fig. 1-4 Influences of Ni and Cr contents on Cuie point (T_c) and thermal expansion coefficient (β) of Fe-Ni and Fe-Ni-Cr alloys.¹⁷⁾

1.2.3 ディスクブレーキ用クラッド板 (SUS403 / Al / SUS403)

減速装置のローター板には摺動面の耐摩耗要求から硬度の高い材料が使用される。また、摺動面が摩擦熱によって過度に発熱するとローター表面の凝着摩耗を招く他、油圧ブレーキではベーパーロックを引き起こす危険もあるため、摺動面で発生した熱はできるだけ効率良く排出されることが望ましい。これらの要求を満たす高機能材料として、アルミニウム母材の両面にマルテンサイト系ステンレスである SUS403 の焼き入れ材を積層した三層クラッド板を開発した¹¹⁾。このクラッド板は、ダウンヒル競技用自転車(Mountain bike, MTB)向けの油圧ブレーキローターに加工され、世界で初めて商品化された。

本クラッド板において、摺動面となる合わせ材には耐摩耗性に優れる材料として SUS403 の焼き入れ材を用いている。しかし、SUS403 の焼入れ温度(1000 °C 付近)がアルミニウムの融点(約 660 °C)よりも高いために、接合圧延した後のクラッド板に焼き入れ処理を施すことはできない。そのため接合圧延にあたっては、あらかじめ焼き入れ熱処理を終えた高強度の SUS403 をアルミニウムと接合する必要がある。このような接合圧延においては、軟質なアルミニウムが特に優先的に変形するために、高強度のマルテンサイト系ステンレスはほとんど展伸することが無い。したがって、ステンレス鋼とアルミニウムとの間には、特に大きな相対すべりと摩擦力が働くこととなり、結果的に大きな圧延荷重を要することになる。また一般に、摺動部材には高い板厚精度と平坦度が求められるが、単一工程からなる接合圧延では高精度での板厚制御が困難となる欠点がある。これらの課題に対し、接合後のクラッドコイルに適正な条件で再圧延加工を施すプロセスを確立することによって、十分な接合強度と板厚精度、平坦性を実現した製造プロセスを確立している。

その際、重要となるのはクラッド材が十分な接合強度を有することである。ステンレス鋼とアルミニウムの接合において、高い接合強度を効率よく得る方法については、第 2 章で述べる。

1.3 ステンレス／アルミニウムクラッド板の接合方法

金属クラッド板の製造には複数の接合方法が知られており、JIS G 0601 クラッド鋼の試験方法¹⁾には、圧延法、爆発圧着法、拡散接合法、爆着圧延法、肉盛圧延法、鋳込み圧延法、拡散接合圧延法、肉盛法が挙げられている。これらの手法を工業的な生産性の視点で見れば、コイルでの圧延法のみがバッチ処理を含まずに高い生産性を実現することが可能であることがわかる。また、金属クラッド板の構成素材の一つとして薄肉のアルミニウムを用いる場合には、アルミニウムが衝撃に対して容易に変形してしまうために爆着法の採用はむずかしい。またステンレス鋼とアルミニウムとの組み合わせにおいては、両材料の溶接が極めて困難であることから、肉盛法や鋳込み法を採用することは実質上不可能である。さらにアルミニウムの融点がステンレス鋼の軟化熱処理温度よりも低いことから、圧延法のなかでも熱間圧延法は採用することができず、圧延法による接合にあたって材料を加熱する場合でも、その上限温度はアルミニウムの融点によって制限を受ける。

新日鐵住金株式会社直江津製造所では、ステンレス鋼とアルミニウムとの金属クラッド板を製造するにあたり、温間圧延接合法による金属クラッドコイルの量産技術を確立している^{18),19)}。温間圧延接合法は、各構成素材の板またはコイルをあらかじめ加熱し、重ね合わせて圧延する方法である。温間圧延法においては、素材の温度を高めることによってアルミニウムが容易に軟化するために、簡便に接合性を高めることが可能となる。素材の加熱温度の上限は、アルミニウムの融点（純アルミニウムで 660 °C）によって制限されるほか、接合圧延後の界面に生成する金属間化合物を抑制する観点からも制限を受ける。その結果、接合直前の実用的な材料温度は、およそ 200～400 °C の範囲であり、代表的には約 250 °C である。このような温度域ではステンレス鋼はほとんど軟化しない。またこのような温度域においては、ステンレス鋼とアルミニウムの両方がともに十分な耐酸化性を有する。したがって、本手法は特別な真空設備や雰囲気加熱炉を必要とせず、大気中での圧延接合が可能である点で、工業的な生産性に優れている。

Figure 1-5 には広巾クラッドコイル製造ラインの概略を示す。本製造ラインでは

素材コイルをインラインで加熱し，その直後に接合圧延して巻き取る設備構成となっている．圧延機はワークロール径が $\phi 250 \text{ mm}$ の 4 段圧延機を使用し，その許容最大荷重は 1350 tonf である．Table 1-1 には本製造ラインで製造実績のあるクラッド材料の製品寸法を示す．コイルの幅は常用最大で 914 mm と広幅クラッドコイルの製造が可能である．広幅クラッドコイルを安定して製造するためには，幅方向での素材温度の均一性および圧延率の均一性を確保する必要がある．このため直接通電方式の加熱装置を用いて素材を均一加熱する技術^{20),21)}や，圧延機のバックアップロールへ VC ロール²²⁾を適用するなどの設備対応を講じている．Fig. 1-6 には，同設備で製造した 16Cr ステンレスとアルミニウムとの二層クラッド板について，幅方向における接合強度分布²⁰⁾を示す．直接通電加熱装置および VC ロールの適用によって，極めて均一な接合強度分布を実現していることがわかる．

同製造ラインで製造している金属クラッド板は，アルミニウムを母材とした二層あるいは三層の構成を基本としているが，合わせ材にはステンレス鋼以外の材料を選択することも可能であり，使用目的に応じた適切な設計により，従来の単一金属材料には無い新機能の創生や高機能化が可能となっている．

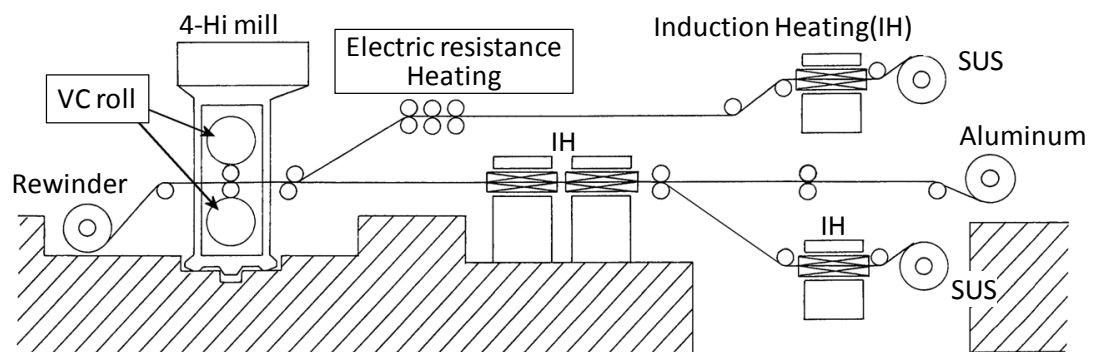


Fig. 1-5 Outline of the clad coil production line. ¹¹⁾

Table 1-1 Product dimensions of SUS / Al clad. ¹¹⁾

combination	Thickness(mm)		Width(mm)
	Total	SUS, Ti	
SUS-Aluminum (SUS/Al, SUS/Al/SUS)	0.6~3.3	0.3~0.8	≤ 914 (Max.1000)
Titanium-Aluminum (Ti/Al, Ti/Al/Ti)	0.6~2.5	0.3~0.7	≤ 914 (Max.1000)

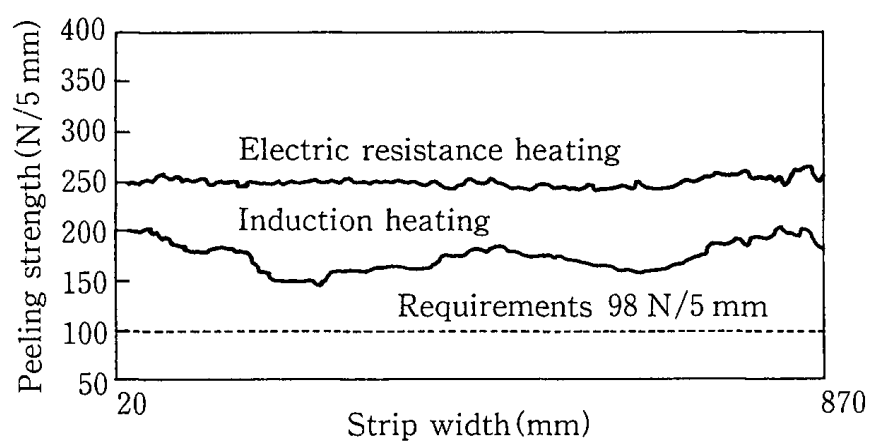


Fig. 1-6 Effect of electric resistance heating on the distribution of bonding strength. ²⁰⁾

1.4 金属クラッド板の接合機構に関する従来の研究と課題

本研究の対象は、母材としてのアルミニウムと合わせ材としてのステンレス鋼を積層した金属クラッド板であり、温間圧延接合法によって積層されたものである。これまで、圧延法で接合されたクラッド板について、様々な接合機構が提案されており、またステンレス鋼とアルミニウムとのクラッド板についても多くの議論がなされている。しかし、接合圧延後に行う熱処理の影響を含めて、接合機構についてはいまだ統一された理解が得られているとは言い難い。

様々な議論される接合機構の一つとして、機械的結合による接合機構が挙げられる。本接合機構は爆発圧着法で接合した金属クラッド板の異種金属界面に現れる波状模様^{23),24)}の効果として代表的に知られている。圧延法で接合した金属クラッド板においても、例えば SUS304L ステンレス鋼と A1050 アルミニウムの素材を冷間圧延した場合には、素材 304L ステンレス鋼の表面に存在した硬化層が、接合前のブラッシング処理および圧延加工によって分断されて亀裂を生じ、形成された谷間に軟質なアルミニウムが侵入して接合する機構²⁵⁾が提案されている。

また別の接合機構として、異種金属界面での相互拡散の進行による接合機構が挙げられる。この接合機構は拡散接合法で金属クラッド板を製造する際の接合を主に担うものであるが、圧延接合法で接合した金属クラッド板の接合機構としても古くから認識されてきた^{26), 27), 28)}。例えばアルミニウムと軟鋼とを真空中で約 500 °C に加熱して圧延接合した材料については、素材アルミニウムの表面に存在した脆性な酸化被膜が圧延加工中の展伸によって破壊され、新生面が露出した部位で接合が生じると考えられてきた²⁹⁾。この機構を圧延法に適用して模式的に示すと Fig. 1-7 のようになる¹⁸⁾。すなわち、圧延加工時の展伸によって材料表面の酸化被膜を含めた汚染層が破壊されて新生面が現れ、圧延圧力によって相手材の新生面と接触し、さらに材料の持つ熱によって異種金属界面での相互拡散が進行して接合するモデルである。この接合機構は、例えば Fig. 1-8 に示すように、実際の接合圧延において、圧延圧力が高いほど、また素材温度が高いほど接合強度が大きくなる事実¹⁸⁾や、接合圧延後にさらに熱処理を施すことによって接合強度が増大する事実をよく説明す

るように思える．実際に，ステンレスクラッド鋼に代表されるような固溶相互拡散型³⁰⁾の組み合わせで，かつ相互拡散が促進されるような熱間圧延接合法においては有効かつ妥当なモデルと考えられる．

しかしながら，本研究で取り扱う熱間圧延接合法で接合したステンレス鋼とアルミニウムとのクラッド板においては，接合圧延したままのサンプルから断面観察試料を採取し接合界面を観察した場合でも，機械的な結合を担うような構造や，相互拡散層の存在などは確認されない．ここで，接合圧延の後に高温で熱処理を行なった場合には相互拡散の進行が確認されるが，ただちに脆い金属間化合物が生成して接合界面が破壊されてしまうため，金属クラッド板の接合に寄与するような相互拡散層の存在は確認できない．

Figure 1-9 には，本研究が対象とする 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの二層の金属クラッド板について，接合界面における元素濃度分布の分析結果の例を示す．すなわち，約 250 °C の温度で接合圧延したままのサンプルと，接合圧延の後に 300 °C, 1800 s の熱処理をおこなったサンプルを準備し，断面埋め込みサンプルを採取して研磨し，その接合界面を横切る位置でオージェ電子分光分析装置（Auger electron Spectrometer）により元素分析した結果の例を示す．分析結果からは接合界面近傍の約 2 μm の範囲で元素組成に連続的な変化が認められる．ここで測定に用いた Auger 電子分光分析装置のビーム径は約 30 nm である．しかしながら同図の上段に示す SEM 写真では，接合界面の近傍に段差の存在が認められる．この段差は埋め込みサンプルを研磨する際に，16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの硬度差に起因して研磨性に差異が生じたために生じたと考えられ，段差部では両層が混合した「かぶり込み」が少なからず発生していると推定される．すなわち断面埋め込み研磨したサンプルから接合界面近傍の元素濃度変化を調査する場合，サンプル調製時の段差や「かぶり込み」の影響を排除することが難しく，測定精度に限界が生じている可能性が否定できない．

また，ここで用いたサンプルの接合強度は，接合圧延したままに比べて 300 °C の熱処理を行なうことにより，ピール強度として約 2 倍に増大する．すなわち相互拡散に基づく接合機構によれば，300 °C 熱処理の後で相互拡散層の成長が予想され

るが, Fig. 1-9 の元素分析結果において接合圧延まま材と 300 °C 熱処理材とを比較すると, 接合強度には約 2 倍の差異が見られるにもかかわらず, 元素組成の分布にはほとんど差異が認められない. 以上の結果から, Fig. 1-9 に見られた界面近傍での元素組成変化が相互拡散層を示すとは考えにくい.

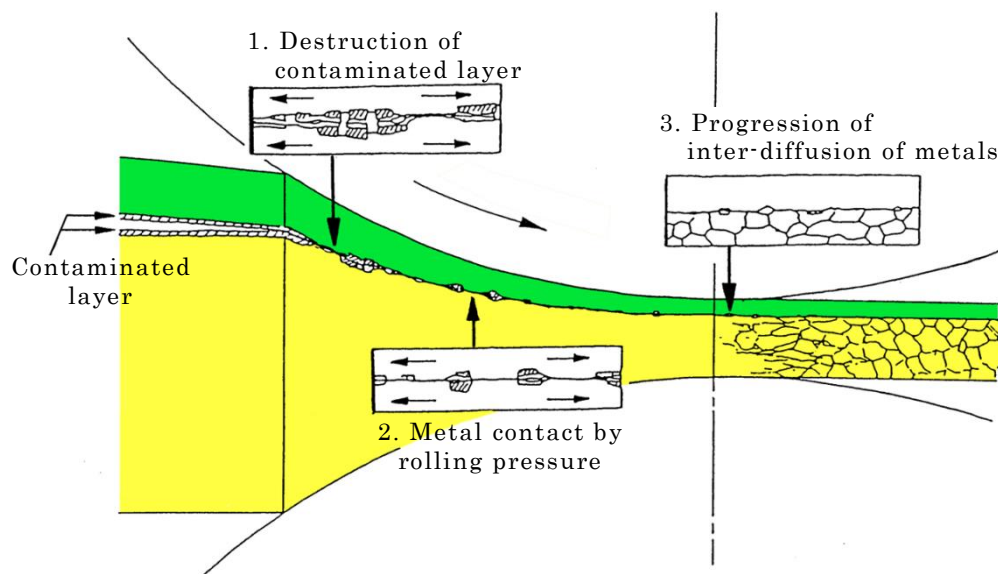


Fig. 1-7 Schematic illustration showing postulated clad bonding mechanism by inter-diffusion in rolling method. ¹⁸⁾

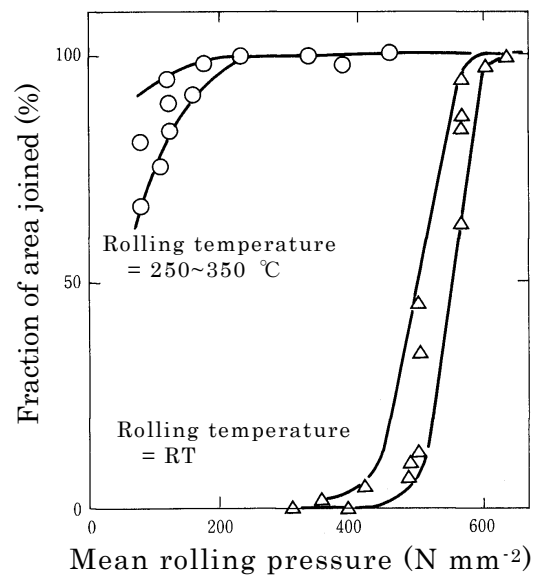


Fig. 1-8 Improvement in joining property by applying warm rolling of 2 layered SUS304/Al clad sheet. ¹⁸⁾

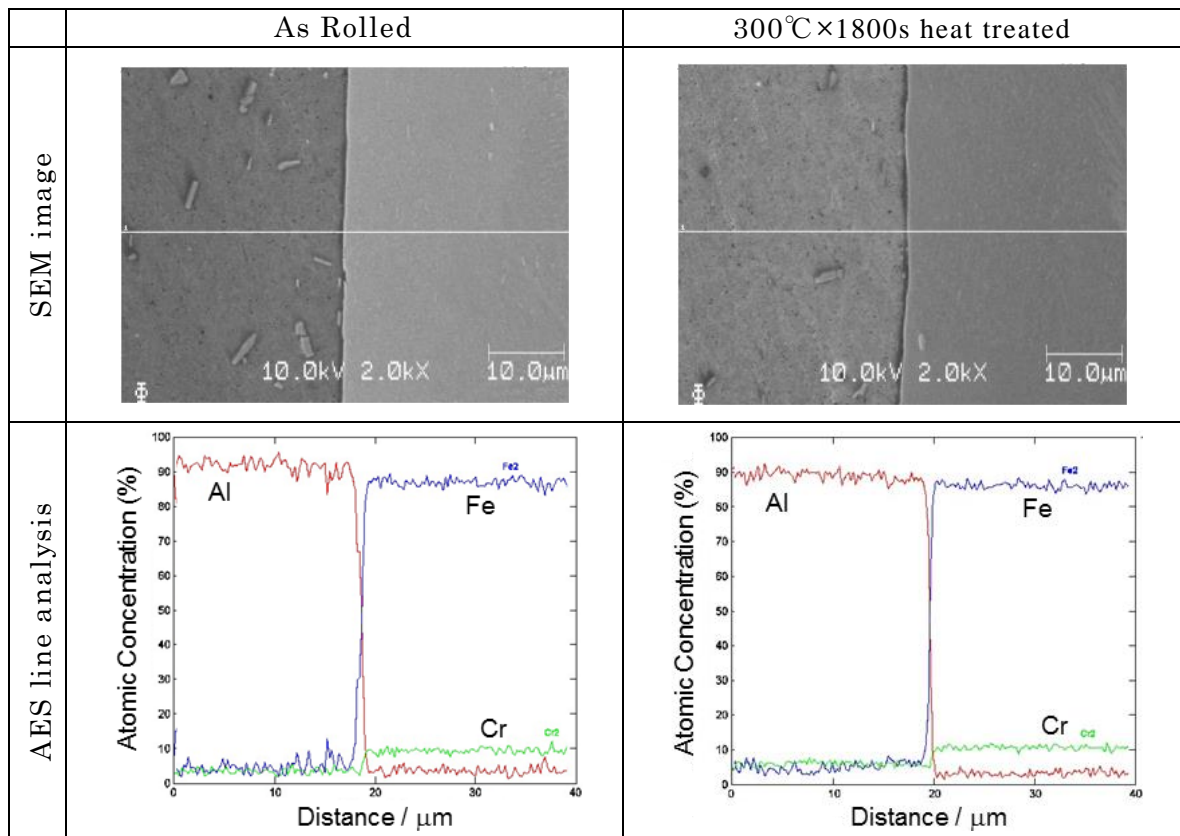


Fig. 1-9 Results of Auger line analysis in the interface of NAR160/A1100 clad sheet. Beam size is approximately 30 nm.

これまでに示した機械的結合や相互拡散に依る接合機構とは別に、次のような提案がある。

SUS304L ステンレス鋼と A3003 アルミニウム合金の素材を 500 °C に加熱した真空圧延においては、圧延接合中の摩擦熱によって接合界面近傍の一部が一旦熔融することによって接合する機構³¹⁾が提案されている。この系においては接合界面近傍の微細構造が調査されており、接合界面近傍の一部が一旦熔融し、さらに急冷されることによって、厚さ数 nm のアモルファス層とともに、A3003 中の Cu 及び Si の高濃度域が選択的に熔融したことによるマダラ組織を形成することが示されている。さらに同クラッド板を圧延接合した後に 500 °C で短時間熱処理すると、上記のマダラ組織が結晶格子縞を持つ羽毛組織に変化し、またアモルファス相とステンレス鋼の間から金属間化合物である微細柱状組織が析出して、これを介して原子拡散が進行する結果、接合強度が上昇する³²⁾と解析されている。これに関連して、別の報告では、板厚 2.3 mm の低炭素鋼熱延板と、板厚が 1 から 2 mm のアルミニウム板を冷間圧延した際の、Fe-Al 界面の圧延中の温度を熱電対の起電力から推定した結果から、初期の 0.05 s 間の平均温度が約 650 °C、瞬間的には 1000 °C 近くまで達しているとされている³³⁾。これら知見から、特に接合圧延時の材料温度が高い条件においては、接合界面近傍の一部が一旦熔融する可能性も否定はできない。

またこれとは別に、SUS304 オーステナイト系ステンレス鋼と A1050 アルミニウムとを大気中の 450 °C の温度で熱間圧延接合した材料については、その接合界面にアルミニウムの非晶質酸化膜と Cr の結晶酸化膜からなる中間層が存在すること、また Cr 酸化物と Al 酸化物が固溶体を形成し易く親和性が良いと考えられることから、これら酸化膜を介して両材料が接合されていることが示されている³⁴⁾。同クラッド板に対しては、圧延接合の後に 400 °C から 600 °C の温度で熱処理した際に生じる金属間化合物によってピール強度が低下する機構が、金属間化合物相の厚みと接合界面の観察結果に基づいて考察されている³⁵⁾。

以上に述べたように、温間圧延法で接合したステンレス鋼とアルミニウムとの金属クラッド板について、その接合を担う界面構造は、nm サイズの微細な構造から

なることが予想される．その接合機構は，界面近傍の一部が一旦熔融することで接合する機構や，素材表面の酸化物どうしの親和性が接合を担っているとする機構が提案されているが，従来例ではその接合温度が 450～500 ℃と比較的高温となっている．さらに接合圧延の後に行う熱処理の影響についても，400～500 ℃の比較的高温での熱処理について議論されていることから，金属間化合物の生成温度に近い範囲での評価となっている．そのため，本研究が対象とするような約 250 ℃での接合圧延による接合界面の構造についての情報や，約 300℃前後での熱処理による接合強度への影響については，知見を得ることができない．

このような接合界面の構造を理解し，接合強度との関係を明らかにすることは，金属クラッド板の接合条件を最適化する検討や，新たな構成材料を採用した場合の接合可否の予測，さらには実使用を考慮した熱処理条件の影響を明らかにするうえで，重要な知見になると考えられる．

1.5 本研究の目的と構成

これまで述べたように，温間圧延接合法を利用して，ステンレス鋼とアルミニウムとの金属クラッド板を，広幅コイルとして量産する技術が確立されている．さらには合わせ材として，焼き入れステンレス鋼を含めた種々のステンレス鋼や，チタン，Fe-Ni-Cr 合金，などを配置した金属クラッド板を開発することにより，従来の金属材料には無い新たな高機能材料を実現している．本研究では，このような金属クラッド板を対象として，先ずその材料が持つ特長と製造方法について述べ，また効率的に高い接合強度を得るための接合条件について検討した．さらに，クラッド板の接合界面における異種金属接合を担う接合機構とともに，熱処理による接合強度の変化とその原因を明らかとすることを目的として，代表例として調理用器物の素材に用いられる 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの二層クラッド板を対象とし，その接合界面の構造を詳細に解析した．最後に，本研究から推定されたピール強度発現機構について検証実験を行った．

本研究における各章の概要は次のとおりである．

第 1 章では，本研究が対象とする金属クラッド板の特徴を，その利用によって得られる機能とともに用途別に述べた．さらに同クラッド板を効率的に製造するための接合方法と，実機製造設備について述べたうえで，金属クラッド板の接合機構に関する従来の研究と課題について整理し，本研究の目的ならびに本論文の構成について記述した．

第 2 章では，温間圧延法によるクラッド板の接合にあたって，得られるクラッド板の接合強度に及ぼす圧延条件の影響を整理するとともに，高い接合強度を効率的に得るための条件について考察した．

第 3 章では，16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとを約 250℃で圧延接合したクラッド板に対して 200℃～600℃の熱処理を行ない，熱処理条件にともなう接合界面の構造変化を調査した．

第 4 章では，圧延法で接合した 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの二層クラ

ッド板を 300 から 500 °C で熱処理した場合にピール強度が増大する現象について、その原因をピール試験後の破壊面に注目して解析し、ピール強度発現機構を考察した。

第 5 章では、薄板の金属クラッド板の接合強度を把握し評価するための手法について整理したうえで、第 4 章で推定したピール強度発現機構について検証実験を行った。

第 6 章では、総括として本研究で得られた知見をまとめ、今後の展開について述べた。

第 1 章の参考文献

- 1) JIS G 0601: Testing methods for clad steels, Japanese Industrial Standards, (2012).
- 2) T.Fukuda and M.Murai: Tetsu-to-Hagane, 76(1990), 1285.
- 3) H.Kurokawa and K.Nakasugi and T.Nagai and T.Koizumi: Journal of the JSTP, 42(2001), 223.
- 4) K.Yoshida: Journal of the JSTP, 38(1997), 921.
- 5) K.Konishi and S.Mitsugi: Journal of the JSTP, 19(1978), 814.
- 6) T.Kawanami: Journal of the JSTP, 42(2001), 168.
- 7) T.Yamamoto: Journal of the JSTP, 45(2004), 76.
- 8) M.Ishio: Journal of the JSTP, 32(1991), 27.
- 9) 井上総一郎, 佐藤宏一, 井上克明, 夢谷元希, 吉田泰三: 西部造船会例会論文梗概, 110(2005), 95.
- 10) 奥井利行, 米満善久, 渋谷将行, 平原一雄, 原一則: 日本鉄鋼協会 第 121 回圧延理論部会資料, 圧理 121-8 (2004).
- 11) T.Okui and Y.Yonemitsu and K.Yoshida: Nippon Steel & Sumitomo Metal Tech. Rep., 396(2013), 106.
- 12) K.Hirahara and K.Nanba and T.Ichikawa and D.Doi: Sumitomo Met., 49-4(1997), 98.
- 13) 三島佳男, 大橋秀行: 素形材, 45-3(2004), 30.
- 14) T.Nishida: Bull. Iron Steel Inst. Jpn., 23(2018), 154.
- 15) IH クッキングヒーターのもうひとつの姿: 暮しの手帖, 暮しの手帖社, 東京, 331(2003-2), 4.
- 16) T.Okui and M.Aoki and S.Iwasaki and H.Kawanishi and J.Oe: Materia Japan, 42-3(2003), 233.
- 17) T.Okui and K.Hamada and M.Aoki: CAMP-ISIJ, 17(2004), 1367.
- 18) D.Doi and T.Tsuruta and K.Nanba and A.Yahiro and K.Hirahara: Sumitomo Met., 45-5(1993), 145.

- 19) D.Doi and A.Yahiro and K.Masui and K.Hirahara and T.Yoshida: J. Jpn. Inst. Met., 32(1993), 364.
- 20) S.Iwasaki and T.Ichikawa and Y.Yonemitsu, K.Hamada and K.Isaka: Sumitomo Met., 49-4(1997), 38.
- 21) K.Hamada and K.Isaka and D.Doi and Y.Yonemitsu and S.Iwasaki: Tetsu-to-Hagane, 88(2002), 66.
- 22) S.Kunimoto and Y.Yoneyama and Y.Aizawa: Nippon Stainless Tech. Rep., 17(1982), 163.
- 23) E.Kakimoto: Journal of the JSTP, 42(2001), 196.
- 24) A.Kubota: Journal of the JSTP, 28(1987), 1121.
- 25) H.R.Akramifard and H.Mirzadeh and M.H.Parsa: Mater. Sci. Eng. A, 613(2014), 232.
- 26) Durst,G: J. Met, 3(1956), 328.
- 27) M.Ishio: Journal of the JSTP, 32(1991), 27.
- 28) D.Doi and T.Yoshida and K.Masui and A.Yahiro : CAMP-ISIJ, vol.2(1989), 346.
- 29) S.Mukae and K.Nishio and M.Katoh and T.Inoue and N.Hatanaka: Q. J. Jpn. Weld. Soc., 9(1991), 17.
- 30) Y.Yamamura and T.Fukuda : Journal of JSTP, 42(2001), 206.
- 31) T.Kawano and M.Matui and K.Nishio and M.Katoh and M.Hirata: Q. J. Jpn. Weld. Soc., 22-2(2004), 291.
- 32) T.Kawano and M.Matui and K.Nishio and M.Katoh and M.Hirata: Q. J. Jpn. Weld. Soc., 22-2(2004), 300.
- 33) M.Maeda and S.Teshima: Tetsu-to-Hagane, 61(1975), 957.
- 34) H.Oikawa and T.Saitou and T.Yoshimura and T.Nagase: Tetsu-to-Hagane, 83 (1997), 629.
- 35) H.Oikawa and T.Saitoh and T.Nagase and T.Kiriyama: Tetsu-to-Hagane, 83 (1997), 641.

第 2 章 クラッド板製造のための圧延接合条件の検討

2.1 緒言

第 1 章に述べた温間圧延法を用いて、新たな組み合わせによるクラッド板の材料開発や製造方法の検討を行なうにあたって、材料間の接合を確実に達成するために必要な圧延条件を、事前に知ることができれば有用である。目的とする異種金属同志が接合しうるかどうかについては、接合手法は異なるものの、拡散接合法による接合可否に関する過去の研究^{1),2)}が参考となる。また経験的には Fig.1-8 に示したとおり、強固な接合強度を得るための条件として、材料温度と圧延圧力の寄与が知られている。さらに圧延中の材料の変形挙動や応力状態については、例えば木内らによる最小エネルギー法を用いた圧延シミュレーション^{3),4)}によって詳細な検討がなされている。しかしながら、これらの知見や手法を利用した場合でも、圧延過程において材料間の接合が十分達成しうるかどうかを事前検討のみから判定することは、極めて困難である。そのため、実際の開発にあたっては、小規模の圧延試験によって目的とする異種金属同志の接合可否を判定するとともに、何らかの評価パラメータを用いて、実際に圧延試験を行ったクラッド板における接合強度と評価パラメータとの相関から接合の良否を評価することが望ましい。

このように、実際の材料開発における接合可否の検討は、小規模圧延試験に依ることがほとんどである。また、一旦、ベースとなる接合条件が見いだされれば、圧延条件を解析することによって、より効率的に強固な接合を得るための圧延条件を検討することができる。さらに、実機生産においては、圧延データを解析することによって適切な条件が実現されているかどうかを判定し、操業条件にフィードバックすることが可能である。

本章では、温間圧延法によるクラッド板の接合にあたって、高い接合強度を効率的に得るための条件として、圧延中の材料間における摩擦エネルギーに注目した。2.3 節では、主に操業解析を目的として新たに提案した、簡便に活用可能な評価パラメータの構築について述べる。その後 2.4 節では、有限要素法による圧延シミュ

レーションを用いて、高い接合強度を効率的に得るための圧延条件について考察した。さらに 2.5 節では、その実証を目的として小型圧延機による接合試験を行なった結果について述べる。

2.2 圧延法によるクラッド接合強度への影響因子について

先に述べたように、温間圧延法によって接合したクラッド板の接合強度には、圧延温度と圧延圧力が強く影響することが経験的に知られている。これら以外に、圧延実績データから得られる情報のうち接合強度に強く影響する因子として、従来の研究では、各素材板の境界における界面すべり量に注目したものが多く見られる。クラッド圧延における材料間の界面すべりを評価するためのパラメータとして、例えば、式(1)に示す前田ら⁵⁾によるすべり量 (d) や、式(2)に示す中村ら^{6),7)}による相対すべり量 (RS) が挙げられる。式(1)および(2)はいずれも二層クラッド板を対象とした算出式であり、 d は接合界面となる構成材料間に働く相対すべり距離に関するパラメータであり、 RS は圧延接合における両構成材料間の速度差に関するパラメータである。

前田らによるすべり量(d)⁵⁾は、式(1)で表わされる。なお末尾の括弧内に示す変換は筆者によるものである。

$$d = \frac{(C+1)(CS+1)(S-1)r}{\{1-(C+1)r+CS\}[1+\{C-(C+1)r\}S]} \left(= \frac{red_b - red_a}{(1-red_a)(1-red_b)} \right) \quad \cdots (1)$$

ここで、2種類の構成材料を材料 A、材料 B として、それぞれの圧延前の板厚を、 H_a 、 H_b 、材料 A の個別圧延率を red_a 、材料 B の個別圧延率を red_b とすると、 C は圧延前の板厚比率(H_a / H_b)、 S は圧下率比率(red_a / red_b)、 r は総圧下率である。

中村らによる相対すべり(RS)⁶⁾は式(2)で表わされる。ここでも末尾の括弧内に示す変換は筆者によるものである。

$$RS = \frac{U_{11}}{U_{21}} \left(= \frac{1 - red_a}{1 - red_b} \right) \quad \cdot \cdot \cdot (2)$$

ここで、 U_{11} は材料 A の圧延入口速度、 U_{21} は材料 B の圧延入口速度である。

これらの評価パラメータは、接合界面における新生面の現出と結びつけて議論される例も見られるが、圧下力は考慮されていない。より一般的には、相対すべり量と圧下力の両方を考慮し、異種金属界面で生じる摩擦エネルギーに関連付けた評価パラメータとして理解する方が妥当であり、この値が大きいほど、接合が促進されると考えられる。

2.3 界面すべり量の実用表現について

材料間の界面に働く摩擦エネルギーを見積もるためには、その構成要素として異種金属界面に生じるせん断力とせん断距離(時間あたりであればせん断ひずみ速度)を知る必要がある。実際の圧延において、材料はその内部でもせん断変形するため、異種金属界面のせん断距離を正確に知ることは困難であるが、圧延過程においてそれぞれの材料が圧延方向に垂直な面を保ったまま変形すると仮定することによって、材料内部のせん断変形を無視し、また圧延ギャップ入口から出口までの形状変化を、円弧では無く直線で近似する仮定を置くことによって、Fig. 2-1 a)のように簡便なモデル化が可能である。本モデルでは材料 A と材料 B の 2 つの構成材料からなる二層クラッド板を対象として以下の考察を進めるが、3 層クラッド板の場合でも同様の考え方でモデルを構成することが可能である。ここで、材料 A に注目すると、 H_a は材料 A の入側厚さを、 h_a は材料 A の出側厚さを表し、材料 B についても同様に表記している。 l_d は圧延ギャップにおける接触弧投影長を表し、式(3)のように、ワークロール半径 R と、入側および出側における合計の材料厚さから算出される。

$$l_d = \sqrt{R \cdot \{(H_a + H_b) - (h_a + h_b)\}} \quad \cdot \cdot \cdot (3)$$

本モデルでは、圧延ギャップ入口において材料 A と材料 B が重なる点が、圧延ギャップ出口では ΔL だけずれることとなり、この距離をすべり距離と定義することができる。また本モデルにおいて、材料 A の個別圧延率 $red_a = 1 - h_a/H_a$ ならびに材料 B の個別圧延率 $red_b = 1 - h_b/H_b$ を用いることにより、 ΔL が式(4)で表現されることを見出した。

$$\Delta L = \frac{l_d}{2} \cdot \frac{red_a - red_b}{(1 - red_a) \cdot (1 - red_b)} \quad \cdot \cdot \cdot (4)$$

ここで、得られた式(4)の右辺から $l_d/2$ を省いた後半部分は、先に述べた前田らによる式(1)によるすべり量(d)と等価であることを確認している。ただし、式(4)の当該部分は、式(1)のすべり量(d)に比べてはるかに簡便に表現されているうえに、変数として入側板厚や総圧下率を必要とせず、材料 A と B の個別圧延率のみで構成されている点が異なる。クラッド圧延において、個別圧延率は、入側と出側の材料速度の比率から直接算出することができるため、操業条件の即時監視のために用いる評価パラメータとしては、式(4)がより適していると言える。

圧延ギャップの入口から出口にかけて、材料が一様に変形する前提では、Fig. 2-1 a)のモデルおよび式(4)が妥当と考えられる。しかしながら実際の圧延接合は、軟質材と硬質材との圧延接合であるために、少なくとも圧延ギャップの入口付近では、硬質材がほとんど変形せずに、軟質材のみが優先的に変形する領域が存在すると考えられる。また圧延ギャップの出口付近では、既に異種金属同志が接合しているために、硬質材と軟質材とが同一の圧延率で減肉すると考えることが妥当である。そこで、圧延ギャップ内部に slip 領域と stick 領域を設定し、前半の slip 領域では軟質材のみが変形して硬質材は変形せず、その後の stick 領域では硬質材と軟質材とが同一の圧延率で減肉するとしてモデルを構築することが可能である。この仮定のもとで slip 領域を l_{d1} 、stick 領域を l_{d2} とし、圧延ギャップ内部での材料変形をあらためてモデル化すると Fig.2-1 b)のようになり、本モデルを用いることによって ΔL を表す最終的な式として、式(5)が得られた。

$$\Delta L = \frac{l_{d1}}{2} \cdot \frac{red_a - red_b}{(1 - red_a) \cdot (1 - red_b)} \quad \cdot \cdot \cdot (5)$$

本モデルでは、各々の材料の個別圧延率から slip 領域と stick 領域の比率が一義的に決定され、slip 領域の長さを l_{d1} で表わすと式(6)のように表現できる。この際、硬質材が変形し始めて以降は、硬質材と軟質材の界面に相対すべりは生ぜず、それゆえに摩擦エネルギーも発生しない。

$$\frac{l_{d1}}{l_d} = \frac{1}{red_a} \cdot \frac{red_a - red_b}{1 - red_b} \quad \cdot \cdot \cdot (6)$$

ここで式(4)と式(5)を比べると、式の形は変わらずに、 l_d の部分のみが l_{d1} に変化している。また式(5)および式(6)は、いずれも構成材料の個別圧延率のみから計算することが可能であるため、前述のとおり、操業条件の即時監視にも適している。

このように求めた ΔL は、単純化した圧延ギャップ形状を前提として、圧延ギャップ入口から出口までの間に、被圧延材である異種金属の界面が、長手方向に向かって相対的なずれを生じた相対すべり距離を表す。ここで異種金属界面に働くせん断力が圧延圧力 P_m に比例すると仮定すると、圧延接合において異種金属界面に生じる摩擦エネルギーは、式(7)の摩擦量評価指数として評価することができる。

$$F = \Delta L \cdot P_m \quad \cdot \cdot \cdot (7)$$

以上に述べたように、実機生産ラインの操業解析においては、各素材の個別圧延率から算出した相対すべり量 ΔL や、摩擦量評価指数 F 、接触弧投影長に対する slip 領域の比率 l_{d1}/l_d 、さらにこれらを組み合わせた指標に基づいて接合状態の良否を評価し、圧延条件にフィードバックする操業管理が有効と考えられる。

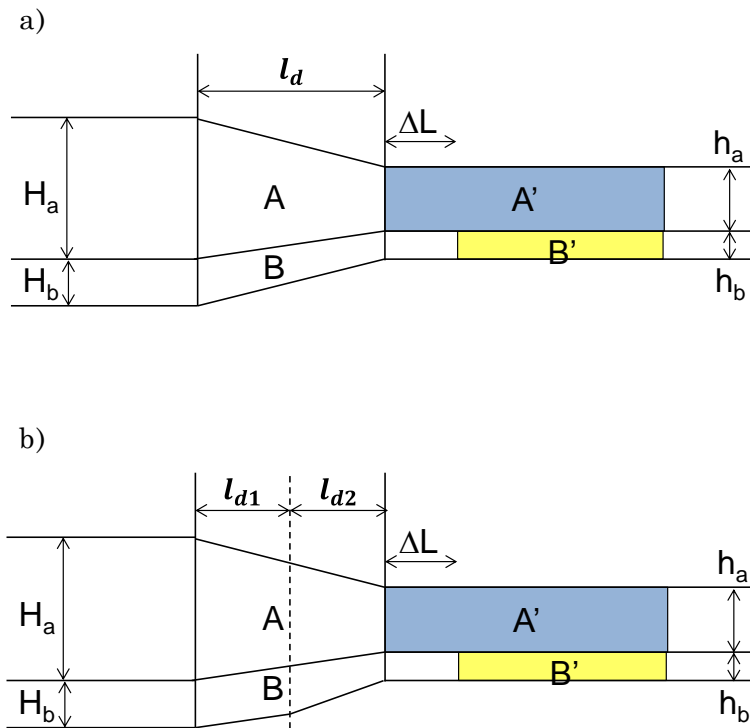


Fig. 2-1 Relative slip (ΔL) between materials A and B within roll gap, and projected contact arc length (l_d). a) The case where the slip continues over the entire gap. b) The case when both slip region (l_{d1}) and stick region (l_{d2}) are considered.

2.4 有限要素法による異種金属間の摩擦発熱量の評価

クラッド板の圧延接合における異種金属界面の摩擦エネルギーを評価するにあたり、実機生産ラインでの操業解析を行なう場合には、前節で述べたような簡略化したモデルに基づいた評価パラメータを用いることが有効である。しかし、より基礎的な検討をオフラインで行なう場合には、有限要素法による圧延シミュレーションを活用することによって、異種金属界面における摩擦発熱量を直接算出し、圧延条件の変化による影響を詳細に評価することができる。本節では、汎用の弾塑性解析コード ABAQUS ver.6.5-4 を用いた伝熱・応力解析によって、SUS304L と A1100 との二層クラッド板を温間圧延法で接合する圧延シミュレーションを行ない、異種金属界面の摩擦発熱量におよぼす圧延条件の影響を検討した。

解析対象とする圧延は、SUS304L 素材として厚さ 0.5 mm の焼鈍材、A1100 素材として厚さ 1.6 mm の焼鈍材を前提とし、合計の圧延率として 44%をベース条件とした。この際、ワークロールは剛体、板は弾塑性体として取り扱い、板幅方向への板拡がりを考慮しない二次元解析とした。界面での臨界せん断応力 τ_{crit} はクーロン摩擦に従うものとし、せん断応力 τ が臨界せん断応力 τ_{crit} 以下の場合には固着状態 (stick) と考えた。また、すべり状態 (slip) では、界面でのせん断力 τ は臨界せん断応力 τ_{crit} に等しいとした。摩擦発熱量はせん断応力とせん断ひずみ速度との積から算出した。

上記の解析において、圧延条件を種々変化させたシミュレーションを行い、材料ごとの個別圧延率、圧延荷重、異種金属間の摩擦発熱量を評価した。この際、より強固な接合強度を得るためには、圧延荷重と異種金属間の摩擦発熱量が、ともに大きくなる条件が有利であると仮定して解析を進めた。変化させた圧延条件は、圧延張力、材料間の摩擦係数、素材厚さ、ワークロール径、ロールと材料間の摩擦係数である。

解析による検討結果を Table 2-1 に示す。標準とした圧延条件に比べて、圧延張力を付与した場合と材料間の摩擦係数を増大した場合には、圧延荷重ならびに摩擦発熱量がいずれも減少した。材料間の摩擦係数の増大によって摩擦発熱量が減少し

たのは、異種金属界面が固着状態(stick)となる領域が増えたためと推察される。また、ワークロールを大径化した条件では、接触弧長の増大に伴って圧延荷重が増大する一方で、摩擦発熱量が減少した。これは、ワークロールの大径化により異種金属界面が固着状態(stick)となる領域が増えたためと考えた。硬質材である SUS304L の板厚を増大させた場合と、ワークロールと材料間の摩擦係数を増大させた条件では、圧延荷重と異種金属間の摩擦発熱量がいずれも増大した。特にワークロールと材料間の摩擦係数を増大させた条件で、顕著な増大が見られることから、ワークロールと材料間の摩擦係数を増大させることによって、接合に有利な圧延条件が実現できることが予測された。

Fig. 2-2 には、ワークロールと材料間の摩擦係数を 0.1, 0.3, 0.6 と三段階に変化させた解析において、ロールギャップ内の相当応力分布を **Mises** 応力で表示した計算結果を示す。ワークロールと材料間の摩擦係数が増大するに伴って、剛体であるワークロール部分の相当応力が増大していることから圧延荷重の増大が確認される。また同様に、ワークロールと材料間の摩擦係数が増大するに伴って、Al の内部がせん断変形しながら減肉する様子が確認され、特に表層近傍に強いせん断ひずみが生じていることが推定される。このせん断ひずみが、大きな摩擦発熱を誘起していると考えた。

そこで次節においては、ワークロールと材料間の摩擦係数が接合強度に及ぼす影響について、小型圧延機を用いた接合試験の結果について述べる。

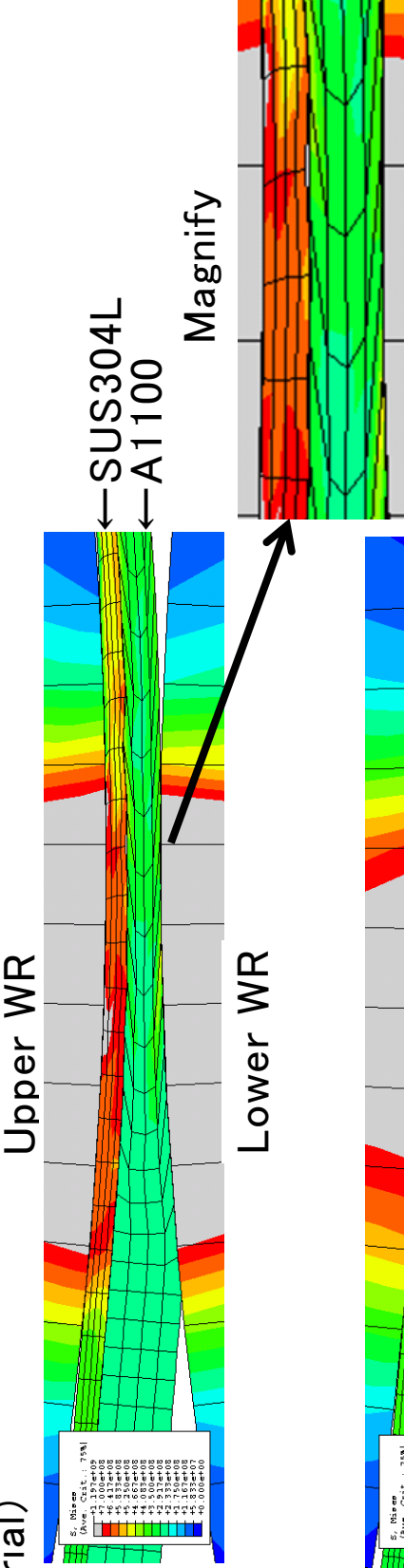
Table 2-1 Results of FEM analysis on the influence of rolling conditions on the frictional heat at the material interface of the two-layer clad sheet of SUS304L and A1100 joined by the warm rolling method.

	Reduction (%)		Rolling force /tonf	Frictional heat $W \cdot m^{-2}$
	SUS	Al		
base condition	36.48	46.12	50.48	11100
rolling tension: SUS=240MPa,CLAD=40MPa	40.11 ↗	43.85 ↘	40.41 ↘	746 ↘
friction coeff.(SUS-Al): 0.3→0.5	41.00 ↗	44.16 ↘	49.84 =	2700 ↘
SUS thickness: 0.495mm→1.587mm	33.59 ↘	53.22 ↗	65.24 ↗	11800 ↗
workroll diameter: φ200→400mm	50.81 ↗	41.69 ↘	84.36 ↗	3780 ↘
friction coeff.(roll-material): 0.1→0.3	33.77 ↘	46.50 ↗	92.08 ↗	15800 ↗
friction coeff.(roll-material): 0.1→0.6	15.22 ↘	55.85 ↗	121.51 ↗	64000 ↗

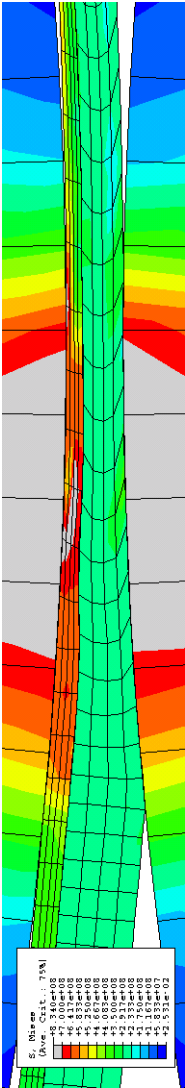
friction coeff.

(WR-material)

$\mu = 0.6$



$\mu = 0.3$



$\mu = 0.1$

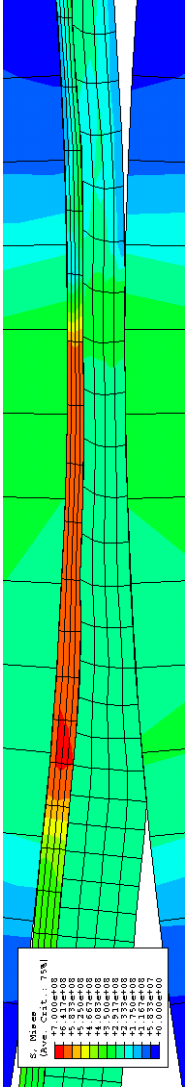


Fig. 2-2 Result of FEM calculation on the influence of friction coefficient between work roll and material on equivalent stress distribution during roll bonding.

2.5 ワークロールと材料間の摩擦係数がクラッド接合強度におよぼす影響について

前節の有限要素法を用いた解析から、圧延法によって SUS304L と A1100 とのクラッド板を接合する際に、ワークロールと材料間の摩擦係数を増大させることによって、圧延荷重と異種金属間の摩擦発熱量との両方が増大することが予想された。本結果から、同条件で圧延接合したクラッド板では、より強固な接合強度が得られることが期待される。本節では上記予測の確認実験として、小型圧延機を用いて潤滑条件を変化させた接合試験を行ない、得られたクラッド板の接合強度を調査した。

2.5.1 実験方法

接合試験に用いる素材板として、SUS304L には板厚 0.5 mm、幅 100 mm の切り板を用い、アルミニウムには A1100 の板厚 1.6 mm、幅 110 mm の切り板を用いた。これらの素材板を重ね合わせて 350 °C の電気加熱炉で大気加熱した後に、ワークロール直径が 200 mm の 2 段圧延機で圧延し、出側板厚を合計で 1.16 mm（圧下率 44%）とした。この際、ワークロールに塗布する潤滑剤の条件を 3 水準に変更し、ワークロールと材料との間の摩擦条件を意図的に変化させた。すなわち、潤滑剤を塗布しない場合（無潤滑）、40°C における動粘度が 7 cSt の出光興産製ダフニーロールオイル FX-50 圧延用潤滑剤を塗布する場合（圧延油潤滑）、混和ちょう度が 325 (/10mm) の出光興産製ダフニーエポネックス SR No.1 を塗布する場合（グリース潤滑）の 3 種類である。なおワークロールには表面を #400 エメリー紙で研磨仕上げしたものをを用いた。圧延後のクラッド板は 300 °C で 1800 s 保持する熱処理を行なった後に、JIS K6854-3(接着剤－はく離接着強さ試験方法－第 3 部：T 型はく離)に類似したピール試験を行ない、単位幅あたりのピール強度を測定した。なお、接合試験における圧延荷重は、圧延機スタンドとロールチョック間に設置したロードセルによる実測値を用いた。また、構成材料の個別圧下率は、当該クラッド板を強制はく離した後の実測した各層の厚さから算出した。

2.5.2 結果と考察

接合試験で得られたクラッド板のピール強度と、圧延接合時の圧延荷重の測定結果とを Fig. 2-3 に示す。横軸にはワークロールと材料間の潤滑条件を表し、左から右に向かって潤滑状態がシビアとなる順、すなわち摩擦係数が大きくなる順序で示している。なお同図の上部には、後述する試験から推定されたワークロールと材料間の摩擦係数を併記した。ワークロールと材料間の潤滑状態がシビアとなるに伴って、クラッド板のピール強度と圧延荷重のいずれもが大きくなっていることから、2.1.3 項の有限要素法による解析から推測された傾向が再現されることが明らかとなった。すなわち、ワークロールと材料間の摩擦係数を増大させることによって、より強固な接合強度が得られることが確認された。

また、Fig. 2-4 には、同じ接合試験で得られたクラッド板の SUS304L の個別圧延率を示す。2.1.3 項の有限要素法による解析では、ワークロールと材料間の摩擦係数が増大するに伴って、ステンレス層の個別圧延率は単調に減少すると予測されたが、Fig. 2-4 の接合試験結果では、横軸に示す潤滑状態の変化に対して凸型の変化を示し、圧延油潤滑の条件で最も大きな個別圧延率を示した。この原因として、接合試験におけるワークロールと材料間の摩擦係数が、グリース潤滑の条件では極めて低く、有限要素法による解析に用いた摩擦係数 0.1~0.6 の範囲の外にあった可能性が考えられる。

クラッド圧延のような非対称圧延において、ワークロールと材料との間の摩擦係数を正確に知ることは困難であるが、単一板サンプルの圧延実験から得られる圧延摩擦係数を用いて推定することは可能と考えられる。そこで一部の条件について単一板サンプルの圧延実験を行なった。

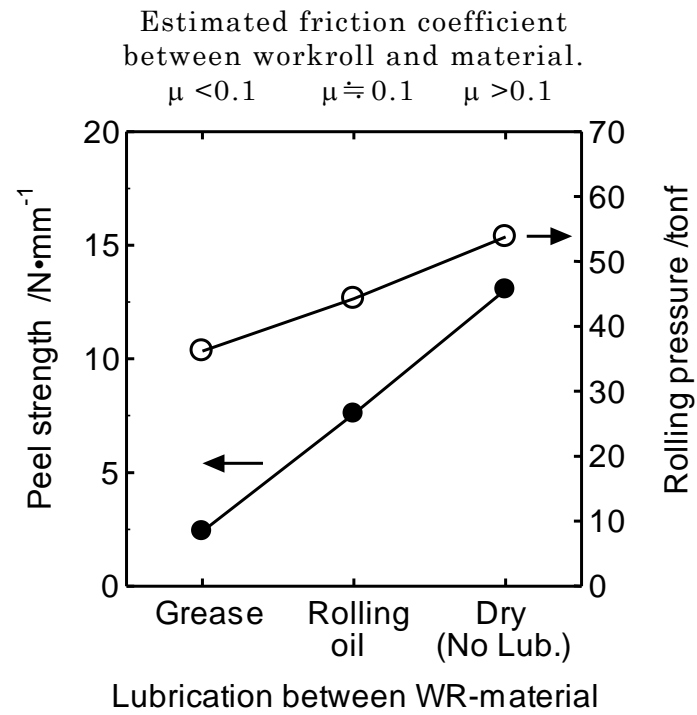


Fig. 2-3 Effect of change in friction coefficient between work roll and material on rolling load and peel strength of clad sheets of SUS304L and A1100 bonded by warm rolling method.

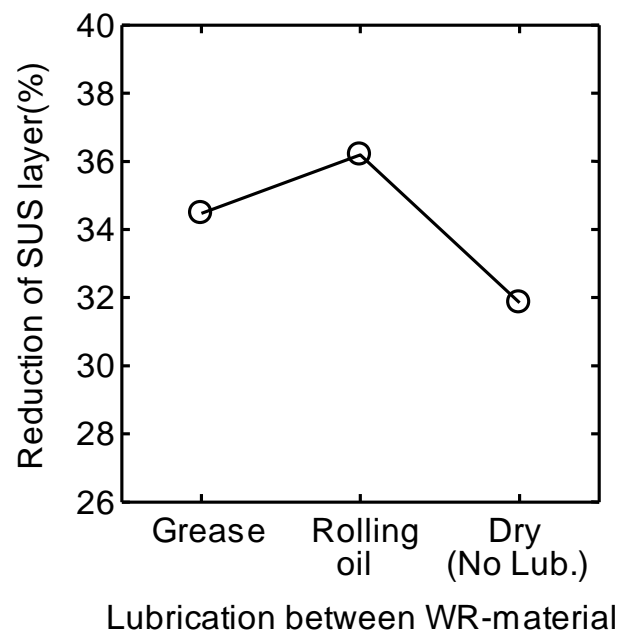


Fig. 2-4 Effect of change in friction coefficient between work roll and material on individual reduction of SUS304L layer in clad sheets of SUS304L and A1100 bonded by warm rolling method.

単一板サンプルの圧延実験に用いた圧延機は、先に述べた接合試験と同じくワークロール直径が 200 mm の 2 段圧延機である。SUS304L 単一板の圧延実験では、厚さ 0.5 mm、幅 100 mm の切り板を素材とし、電気加熱炉で 300 °C に大気加熱した後に、圧延油を塗布したワークロールで圧延率 10 % の圧延を 1 パスで実施した。アルミニウム単一板の圧延実験では、A1100 の厚さ 2.7 mm、幅 100 mm の切り板を素材とし、電機加熱炉で 300 °C に大気加熱した後に、圧延油を塗布したワークロール、もしくは潤滑剤を塗布しない無潤滑のワークロールで圧延率 30 % の圧延を 1 パスで実施した。これら圧延実験による圧延摩擦係数は、ケガキ法で実測した先進率から、Bland & Ford による近似式^{8),9)}を用いて逆算することにより求めた。なお、グリース潤滑の条件では、ケガキ法による先進率の実測ができなかったため、本手法から圧延摩擦係数を求めることができなかった。

圧延実験の結果、SUS304L 単一板を圧延油潤滑したワークロールで圧延した場合には、安定して 0.11 の圧延摩擦係数が得られた。Fig. 2-5 には A1100 単一板の圧延実験から得られた圧延摩擦係数を、圧延長さの進行に伴う変化とともに示す。A1100 単一板においても、圧延油潤滑したワークロールで圧延した場合には、0.10~0.12 の圧延摩擦係数が安定して得られた。一方で、無潤滑のワークロールで圧延した場合の圧延摩擦係数は、圧延開始時点の 0.3 から、圧延の進行とともに増大し、変動しながら最大で 0.55、平均で 0.45 程度の値を示している。この圧延摩擦係数の変動は、ワークロール表面へのアルミニウム素材の凝着、すなわち連続的なコーティングが影響していると考えられる。

上記の結果から、Fig. 2-2 に示した接合試験におけるワークロールと材料間の摩擦係数は、圧延油潤滑の場合で SUS304L とアルミニウムともに約 0.1 と推定される。また無潤滑の場合には、アルミニウム側で 0.45 前後と推定され、SUS304L においても 0.1 を超えると考えられる。一方で、グリース潤滑の場合には、少なくとも圧延油潤滑の 0.1 よりも低い圧延摩擦係数が推定される。このためグリース潤滑の場合には圧延接合時の圧延荷重が小さくなり、硬質なステンレス層が変形しにくく、アルミニウムが優先して変形しやすい状況になったために、Fig.2-3 において SUS304L の個別圧延率が増大しなかったと推察される。

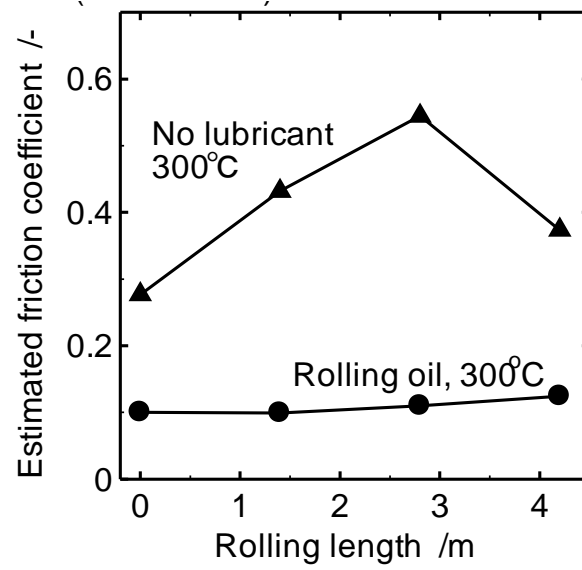


Fig. 2-5 Trend of friction coefficient estimated from rolling test results of A1100 sheet with rolling length.

2.6 結言

本章では，温間圧延法によるクラッド板の接合にあたって，高い接合強度を効率的に得るための条件として，主に圧延中の異種金属間における摩擦エネルギーに注目し，実機生産ラインの操業解析で活用可能な評価パラメータを提案した．さらに，ワークロールと材料間の摩擦係数増大による接合強度向上の効果について検討した．

実機生産ラインの操業解析においては，圧延中に直接採取可能なデータのみを用いて，即時計算が可能な評価パラメータの構築が必要である．そのため，圧延機の入側と出側との材料速度の比率から直接算出が可能な個別圧延率を用いて，圧延ギャップ内での異種金属界面の相対すべり距離を算出する簡便なモデルを提案した．本モデルから求まる相対すべり量 ΔL ，摩擦量評価指数 $F(=\Delta L \cdot P_m)$ ，接触弧投影長に対する slip 領域の比率， l_{d1}/l_d ，さらにこれらを組み合わせた指標は，実機生産ラインの操業中に接合状態の良否を評価し，圧延条件にフィードバックする操業管理のために有用である．

また，有限要素法による圧延シミュレーションを用いた解析からは，圧延法によって SUS304L と A1100 とのクラッド板を接合する際に，ワークロールと材料間の摩擦係数を増大させると，圧延荷重と異種金属間の摩擦発熱量とのいずれもが増大することが予想され，同条件で圧延接合したクラッド板では，より強固な接合強度が得られることが期待された．その検証のために，小型圧延機を用いて潤滑条件を変化させた確認試験を行なった結果，ワークロールと材料間の摩擦係数が大きい場合に，より強固な接合強度が得られることが確認された．

第 2 章の参考文献

- 1) 大橋修: 拡散接合, 産報出版, (1994).
- 2) 最近のろう接・拡散接合技術, 溶接学会界面接合研究委員会編, 溶接学会, (1989), 137.
- 3) M.Kiuchi and Y.M.Hwang: Journal of the JSTP, 30(1989), 1308.
- 4) M.Kiuchi and Y.M.Hwang and K.Shintani: Journal of the JSTP, 30(1989), 1316.
- 5) M.Maeda and S.Teshima: Tetsu-to-Hagane, 61(1975), 957.
- 6) M.Nakamura and S.Maki and T.Matsuda and N.Nagai: Journal of the JSTP, 29(1988), 404.
- 7) S.Maki and M.Nakamura and T.Matsuda and N.Nagai: Journal of the JSTP, 30(1989), 71.
- 8) H.Ford and F.Ellis and D.R.Bland: J. Iron & Steel Inst., 168(1951), 57
- 9) H.Ford and F.Ellis and D.R.Bland: J. Iron & Steel Inst., 171(1952), 239

第 3 章 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの圧延クラッド材 の接合界面微細構造

3.1 緒言

第 1 章で述べたとおり，圧延法で接合されたクラッド板は，強固で均一な接合強度を有するとともに大量生産に適する材料であることから，個々の特性に応じた様々な組み合わせの高機能材料として活用されている．なかでも，ステンレス鋼とアルミニウムとのクラッド板は，ステンレス鋼が持つ強度特性や耐食性に加えて，アルミニウムが持つ軽量性や熱伝導特性とを兼ね備えた高機能材料として利用されている¹⁾．ステンレス鋼とアルミニウムとの圧延接合においては，素材の温度を高めることによってアルミニウムが容易に軟化し，簡便に接合性を高めることが可能なことから，温間圧延法による接合が適している．その際，アルミニウムを軟化させるために必要な 200～400 °C 程度の温度域においてはステンレス鋼とアルミニウムの両方がともに十分な耐酸化性を有することから，本手法は特別な真空設備や雰囲気加熱炉を必要とせず，大気中での圧延接合が可能である点で，工業的な生産性にも優れている．

これまで，圧延法で接合されたクラッド板について様々な接合機構が議論されており，ステンレス鋼とアルミニウムとのクラッド板についても多くの議論がなされている²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾．その詳細は 1.4 節に述べたとおりであるが，温間圧延法で接合したステンレス鋼とアルミニウムとの金属クラッド板においては，その接合を担う界面構造は，nm サイズの微細な構造からなることが予想される．またその接合機構としては，界面近傍の一部が一旦熔融することで接合する機構³⁾や，素材表面の酸化物どうしの親和性が接合を担っているとする機構⁵⁾が提案されている．しかしながらこれら従来の検討例ではその接合温度が 450～500 °C と比較的高温となっているほか，接合圧延の後に行う熱処理の影響についても，400～500 °C と高温について議論されており，金属間化合物の生成温度に近い範囲での評価となっている．すなわち本研究が対象とするような，約 250°C で圧延接合されたステンレス鋼とアルミ

ニウムとのクラッド板について、その接合界面の微細構造を詳細に調査した例は少なく、その接合機構も明らかでない。また、同クラッド板を上述した 500℃よりも低い 300～400℃の温度で熱処理した場合には、中間層を超えた原子拡散が困難となることが予想されるにもかかわらず本研究で明らかとなったように接合強度の上昇が見られる。しかし、この熱処理にともなう接合界面の微細構造変化について検討された例は見当たらない。

そこで、本報¹⁾では、約 250℃の温度で圧延接合した 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの二層クラッド板を対象とし、また圧延接合の後に 300 から 600℃の熱処理を行なった際の接合界面の微細構造変化に焦点を当て調査した。詳細な接合機構については、次章で述べる。

3.2 実験方法

調査には、16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとを積層した二層のクラッド板を用いた。各々の代表的な化学組成は Table 3-1 に示すとおりである。素材となる 16Cr ステンレス鋼には大気焼鈍・酸洗したコイル材を用い、あらかじめその接合面を砥粒入りナイロンブラシでブラッシング処理して清浄化した。もう一方の素材であるアルミニウムには JIS H 4000 に規定された 1100 アルミニウム（以下 A1100 と表記する）の調質仕様 H24 のコイルを前処理なしで用いた。

圧延接合にはワークロール径が $\phi 250$ mm の 4 段圧延機を用い、圧延機の入側に配置した素材コイルを大気中でインライン加熱し、重ね合わせて圧延接合した。圧延ロール直前での素材コイル温度は両素材ともに約 250°C 、接合は 1 パスの圧延で行ない、全板厚を合計した圧下率は 21.4% である。圧延接合を完了した時点の厚さは、16Cr ステンレス鋼が 0.55 mm、A1100 アルミニウムが 1.50 mm であり、合計して 2.05 mm である。

このように製造した二層クラッド板に対して接合後に熱処理を行ない、熱処理条件にともなう接合強度の変化、ならびに接合界面近傍における金属組織の変化を中心に調査した。

熱処理のためには接合したクラッド材から切り板サンプルを採取し、その一部を $200\sim 600^{\circ}\text{C}$ の電気加熱炉で $300\sim 30000$ s 保持する熱処理を行なった。

クラッド板の接合強度は、JIS K6854-3(接着剤－はく離接着強さ試験方法－第 3 部：T 型はく離)に類似したピール強度によって評価した。試験片は引っ張り方向が接合時の圧延方向と平行となる方向で 10 mm 幅×150 mm 長さとし、幅方向の端面は切断時の影響を除去するために切削仕上げした。得られた試験片について長手方向の片側端部を機械的に強制はく離して Fig. 3-1 に示す T 字型試験片とし、分離したステンレス鋼とアルミニウムのそれぞれを引っ張り試験器のつかみ具にチャッキングして、クロスヘッド速度 150 mm/min の条件で引き剥がした。接合強度は、その際のクロスヘッド荷重の平均値を試験片幅で除した値を以て、単位幅あたりのピール強度($\text{N} \cdot \text{mm}^{-1}$)と定義して算出した。

接合界面近傍の観察については、クラッド板の圧延方向に平行な断面について、エメリー紙による湿式研磨によって断面観察試料を作製し、研磨ままの断面を光学顕微鏡で観察した。また同断面を 5%の弗化水素酸水溶液に浸漬エッチングすることによって、アルミニウム層のミクロ組織を観察した。研磨まま断面の光学顕微鏡観察において、接合界面に金属間化合物が認められた試料の一部については、SEM (Scanning Electron Microscopy) による観察とともに、SEM に搭載された EDS (Energy Dispersive X-ray Spectrometry) を用いて元素分析を行った。

さらに圧延接合したままの二層クラッド板、ならびに接合圧延後に熱処理した試料のうち 400 °C で 300 s 保持する熱処理を行なった二層クラッド板については、その接合界面を含む薄膜試料を作製し、FE-TEM (Field Emission - Transmission Electron Microscopy) で観察することにより微細構造を詳細に調査した。FE-TEM 用の薄膜試料は、圧延方向に平行な断面となるように FIB-マイクロサンプリング法によって採取した。この際、FIB 加工時の熱によって特にアルミニウムが変質することを極力避けるために、クライオ FIB (Cryo-Focused Ion Beam) 装置を使用した。表面保護のためには、最表面に約 50 nm 厚さで C 蒸着した後に FIB により C デポジット処理を施している。接合界面の微細構造観察においては、接合界面を横断する部位についてマイクロ電子線回折 (μ -electron diffraction) による構造解析と μ -EDS による元素分析を行い、物質の同定を行った。また、 μ -EDS の強度プロファイルから各相の構成元素の半定量解析も実施した。

Table 3-1 Typical chemical compositions of 16Cr-stainless steel and A1100 aluminum.

16Cr-stainless steel					(mass%)
C	N	Si	Mn	Cr	Fe
0.008	0.011	0.55	0.45	16.4	bal.

A1100 aluminum				(mass%)
Si	Fe	Cu	Mn	Al
0.10	0.58	0.13	0.01	bal.

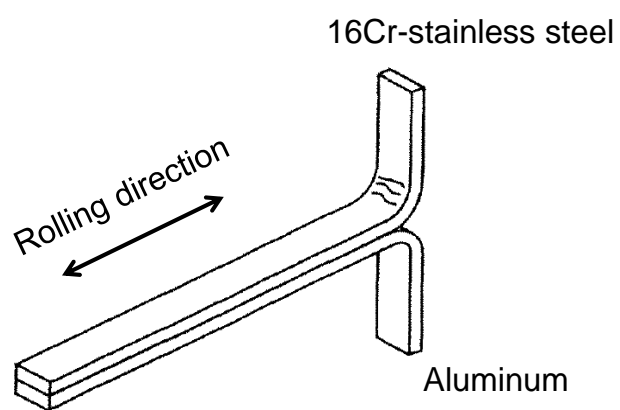


Fig. 3-1 Shape of specimen used for peel strength test.

3.3 実験結果

3.3.1 熱処理条件にともなうピール強度変化

クラッド板の実使用における最も重要な特性として界面の接合強度が挙げられる。この接合強度には、クラッド板の接合界面の状態が強く反映されと考えられることから、クラッド板のマクロな特性として先ず接合強度を評価した。なお肉厚の薄いクラッド板においては接合界面の垂直引っ張りによる破壊荷重や界面せん断荷重を直接測定することが困難なため、接合強度の評価には一般に 3.2 節に述べたようなピール強度が用いられる。

圧延接合後に熱処理されたクラッド板のピール強度の加熱温度および加熱保持時間依存性を Fig. 3-2 に示す。圧延接合したままの状態と 200 °C 熱処理材とではピール強度に変化が無いが、300 °C の熱処理によってピール強度は明瞭に増大し始める。200 °C の熱処理によってピール強度が変化しないのは、圧延接合のプロセスにおいて、クラッド材が 200 °C 以上の熱履歴を既に経験しているためと考えられる。熱処理温度のさらなる上昇にともなってピール強度は増大し、450~500 °C で最大を迎えるが、500 °C の熱処理では長時間（30000 s）の熱処理を行なうと一部でピール強度の急激な低下が見られるようになる。ここで 450 °C までの熱処理温度ではピール強度に対する 30000 s までの熱処理時間の影響は認められず、ピール強度は熱処理温度にのみ依存している。熱処理温度が 500 °C 以上となるとピール強度に対する熱処理時間の影響が強く表れるようになり、500 °C では 30000 s、550 °C では 3000 s、600 °C では 300 s 以上の保持時間でピール強度が急激に低下する。これらのうちピール強度がゼロと評価されたデータは、ピール試験を行なう以前に接合界面が既に破壊したためにピール試験を行うことができなかったことを示している。

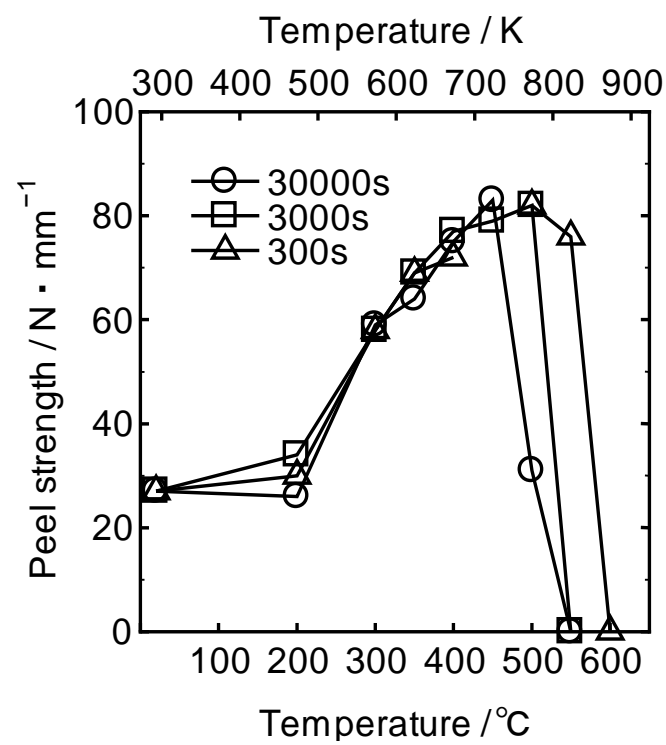


Fig. 3-2 Effect of heat treatment conditions on peel strength.

3.3.2 接合界面近傍の光学顕微鏡組織観察

Figure 3-3 は，上記と同様に熱処理されたクラッド板のうち，熱処理温度が 200 °C から 600 °C，保持時間を 3000 s とした条件について，接合界面近傍における主にアルミニウムのミクロ組織写真を示す．図中に矢印で示した位置が接合界面を示し，その上方がアルミニウム層である．ステンレス鋼とアルミニウムとの圧延接合においては，両素材の変形抵抗が大きく異なるために，個々の材料の圧延圧下率に差異が生じる．そのため少なくとも圧延ロール入口近傍では両素材に速度差が生じ，これに起因して，圧延中の両素材の接触界面では相対すべりによるせん断応力とせん断ひずみが生じることが予想される．実際，圧延接合したままのクラッド板において，接合界面近傍のアルミニウムには上記のせん断ひずみに起因したメタルフローが強く残留しており，その様相は 200 °C 熱処理材においても同様である．熱処理温度が 300 °C に上昇すると圧延中のせん断ひずみを強く受けたと考えられる接合界面近傍のアルミニウム側においては再結晶が進行し始め，350 °C 以上では視野内の全領域が再結晶組織を呈する．なお 350 °C から 450 °C の範囲では，接合界面の極近傍においてアルミニウムの著しい粒成長は認められず，周囲に比べて細粒を保つ傾向が見られる．

なおステンレス鋼のミクロ組織についてはデータを示さないが，いずれの熱処理温度においても加工組織を呈しており，再結晶粒の形成は認められなかった．また，Fig. 3-3 において 550 °C および 600 °C の接合界面では，熱処理の工程もしくは断面試料調製の過程で界面破壊を生じた結果，両素材の間に空隙が認められた．

Figure 3-4 には，同様に熱処理されたクラッド板のうち，熱処理温度が 500 °C から 600 °C，保持時間を 300 s から 30000 s とした条件について，接合界面近傍の湿式研磨ままの光学顕微鏡写真を示す．500 °C の熱処理材では，300 s から 30000 s のいずれの保持時間においても接合界面の状態は同一であり光学顕微鏡で観察する限りにおいて，異相の生成は確認されない．熱処理温度が 550 °C になると，接合界面には異相が見られるようになり，保持時間が 300 s の条件では不連続に島状の異相が認められる．保持時間が 3000 s を超えると異相が接合界面の全域を覆い，異相

とアルミニウムとの界面が破壊されて分離する。また保持時間が 3000 s の熱処理では異相の平均厚さが約 4 μm であり, 30000 s の条件では同じく平均の厚さが約 13 μm と厚く成長している。さらに熱処理温度が 600 $^{\circ}\text{C}$ に上昇すると, 保持時間が 300 s から 30000 s の全ての条件で接合界面の全域を覆う異相が見られ, 異相とアルミニウムとの間では破壊が認められた。ここで 600 $^{\circ}\text{C}$ の熱処理条件においては保持時間によって異相の厚さに変化が見られず, いずれの保持時間においても平均で約 6 μm と一定となった。これは後でも述べるが, 異相界面に空隙ができたため, 原子拡散が不可能になったことに起因すると考える。

Figure 3-5 には, 熱処理温度が 550 $^{\circ}\text{C}$ および 600 $^{\circ}\text{C}$ で保持時間が 300 s と 30000 s の条件で熱処理した材料における接合界面の SEM 反射電子像を示す。550 $^{\circ}\text{C}$ で 300 s 保持した Fig. 3-5 a) では生成初期の異相が接合界面からアルミニウム側に向かって島状に成長する様子が見られる。その他の Fig. 3-5 b) ~ d) の条件では異相が接合界面の全面を覆っているが, ステンレス鋼側の異相界面はほぼ直線であることからこの異相界面が初期の接合界面に相当すると考えられる。また, 熱処理条件に関わらず, 異相は接合界面からアルミニウム側に向かって成長したと推察する。なお, アルミニウム側の異相先端は均一でなく凹凸が認められる。これは, Fig. 3-5 a) の 550 $^{\circ}\text{C}$ 300 s の熱処理材で見たように, 生成初期には異相が局所的に成長するため, 部位によって異相の厚さに変動が生じたためと考えられる。

これら異相について SEM-EDS スペクトルから ZAF 補正法 (ZAF correction method) を用いて元素分析した結果を Fig. 3-5 中に併せて示す。EDS スペクトルには主に Fe と Al が検出され, また酸素が検出されないことから, これら異相は Fe-Al 系の金属間化合物と考えられる。Al と Fe との原子比は, 熱処理条件もしくは部位によって異なる。すなわち, 異相の生成初期である Fig. 3-5 の a1 もしくは成長先端であるアルミニウム側の b1 や c1 では Al/Fe 比が 3.0 を上回ることから, $\theta\text{-FeAl}_3$ 金属間化合物と金属 Al が混合した状態にあると考えられる。同様にステンレス鋼に近い側の Fig. 3-5 の b2 や c2 では Al/Fe 比がほぼ 3.0 に近いことから $\theta\text{-FeAl}_3$ 金属間化合物の単体として存在すると考えられる。さらに 600 $^{\circ}\text{C}$ で 30000 s の保持を行なった接合界面では, その部位に関わらず Al/Fe 比が約 2.5 となり, 異相の全体

が $\eta\text{-Fe}_2\text{Al}_5$ となっていると考えられる.

ここで 550~600 °Cにおける $\theta\text{-FeAl}_3$ 金属間化合物の線膨張係数はおよそ $1.55 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ とされ⁶⁾, 16Cr ステンレス鋼の $1.2 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ と比べると約 1.3 倍大きく, A1100 アルミニウムの $2.3 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ と比べると約 0.7 倍と小さい. すなわち加熱中の金属間化合物には隣接するアルミニウムの熱膨張によって大きな引張の応力が加わることが予想される. また, $\theta\text{-FeAl}_3$ の破壊靱性値 (K_{IC}) は $1.27 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ と低く, 脆い⁷⁾. そのため熱処理過程 (おそらく加熱中) での引張熱応力が大きいアルミニウム側で脆い金属間化合物が破壊したと推察される. Fig. 3-2 で見られたように, 高温かつ長時間で熱処理したクラッド板にはピール強度の急激な低下が生じたのは, 上記のような理由であると推察される. なお, 600 °C熱処理材では金属間化合物の厚さが薄い. これは, 既に述べたように熱処理の加熱途中で 600 °Cに到達する以前に界面破壊が生じたことを示すと考えられ, そのために金属間化合物が一定厚さ以上には成長することができなかったものと考えられる.

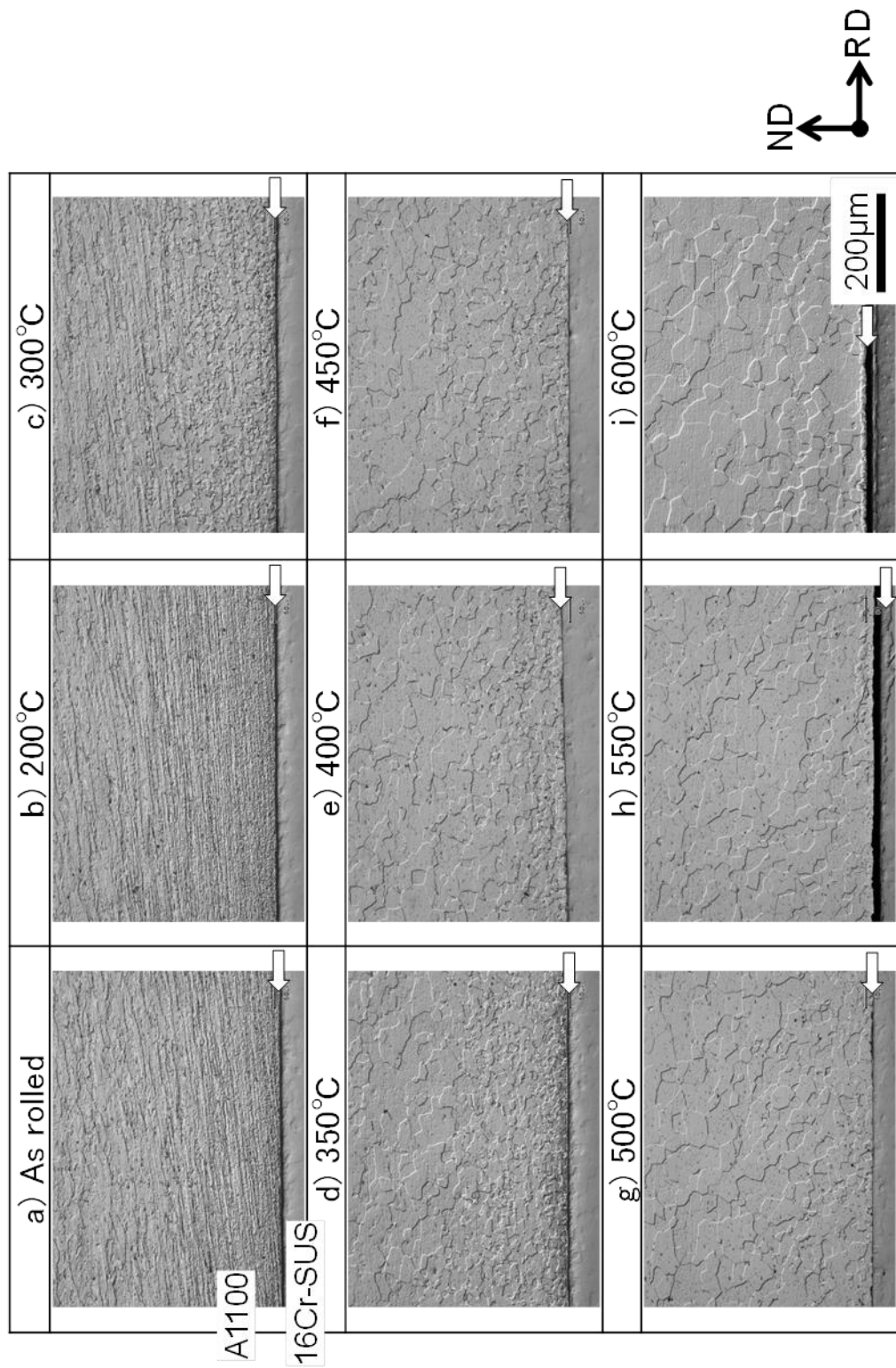


Fig. 3-3 Optical micrographs showing change in microstructure of aluminum close to bonding interface as a function of annealing temperature for 3000 s. Arrows indicate interface between 16Cr stainless steel and aluminum.

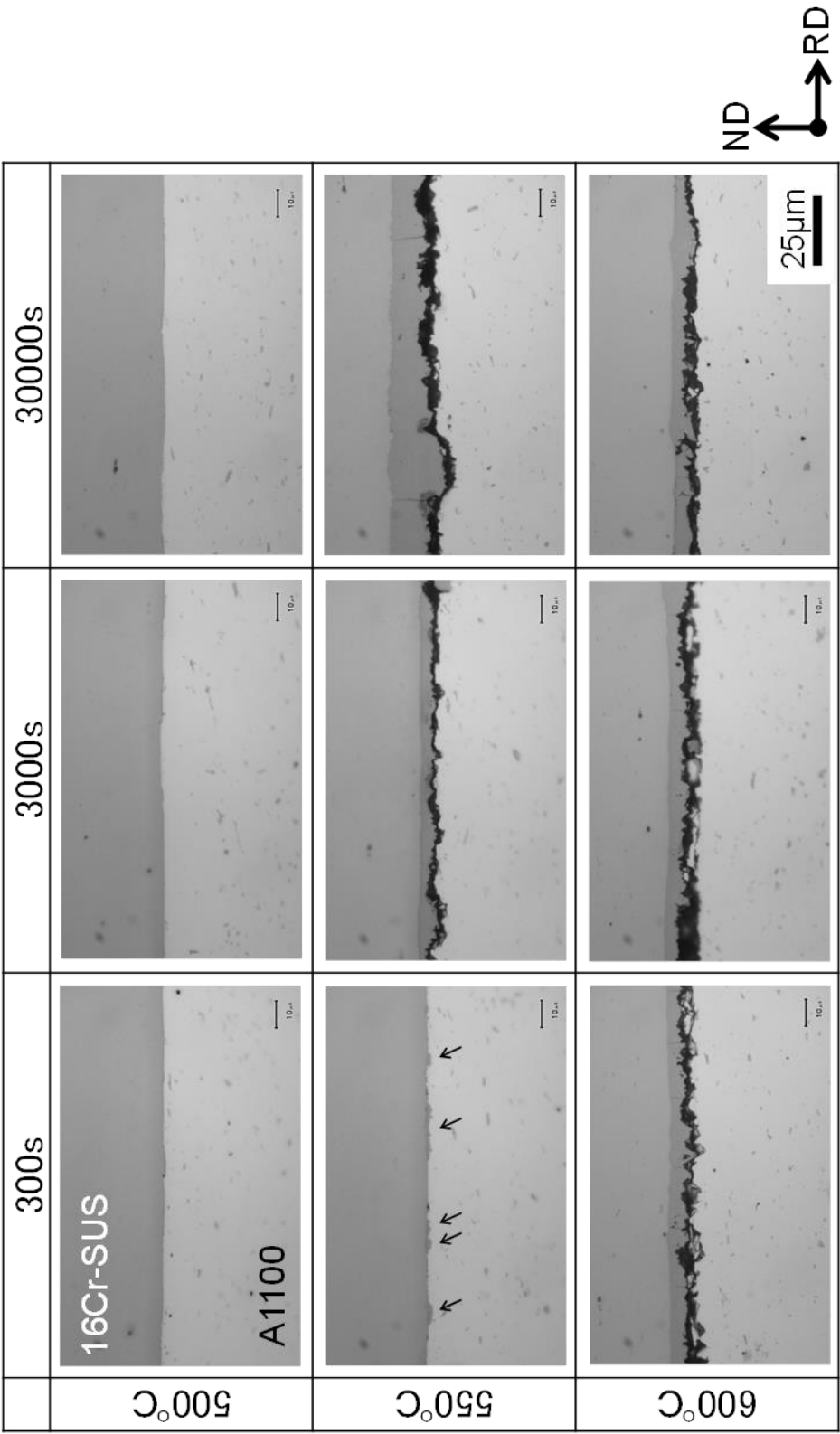


Fig. 3-4 Optical micrographs showing intermetallic compound formed at bonding interface subjected to various heat treatments.

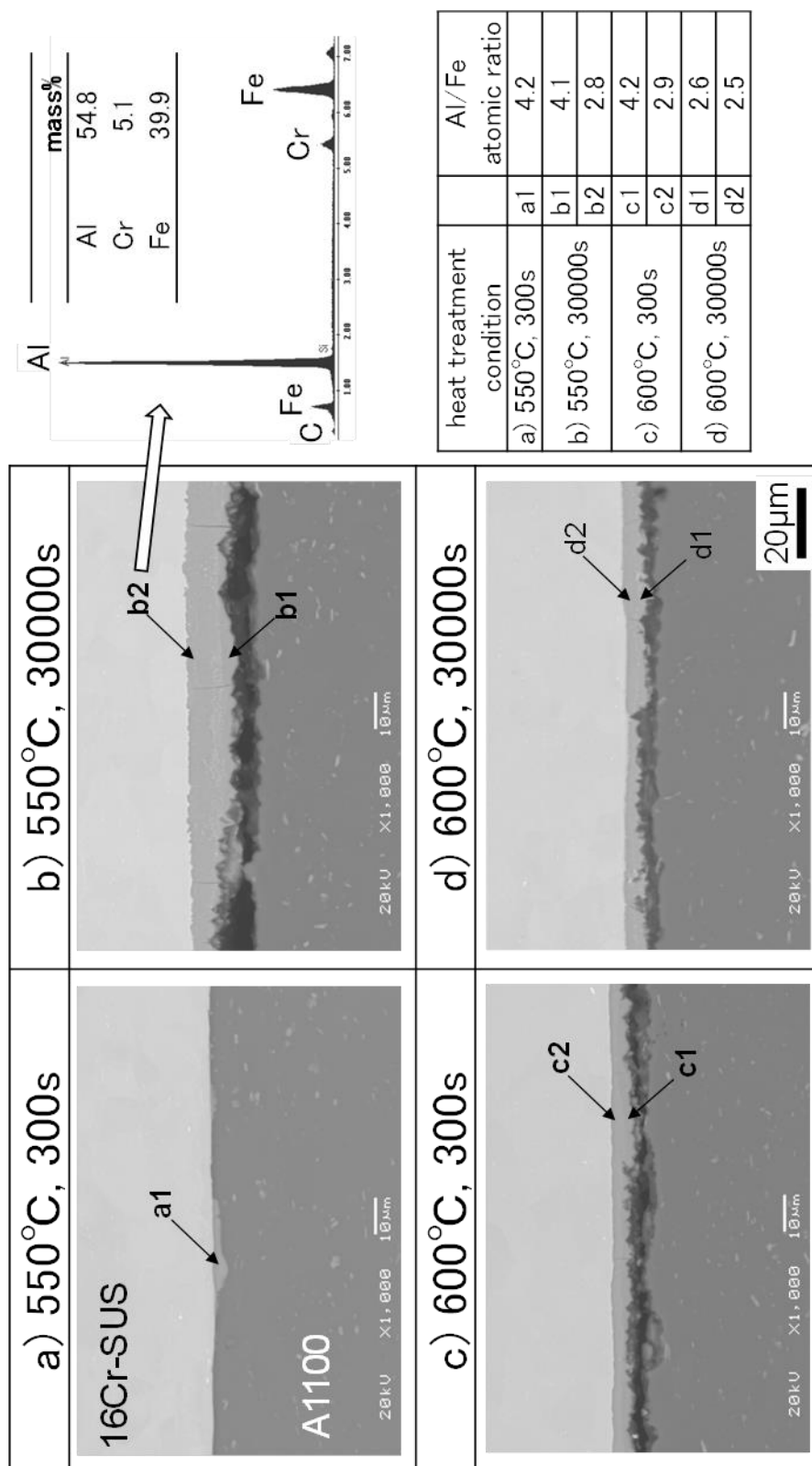


Fig. 3-5 SEM-BSE image of heat-treated bonding interface and SEM-EDX analysis result of intermediate layer.

3.3.3 接合界面の TEM 観察

これまでの結果から、約 250 °C で圧延接合したクラッド板を 300 °C から 500 °C の温度で熱処理すると、接合界面近傍のアルミニウムでは再結晶が開始するが、光学顕微鏡観察では接合界面に顕著な変化は見られない。さらに 550 °C 以上の熱処理では、保持時間の延長とともに脆い Fe-Al 金属間化合物の形成とその成長が観察され、さらに加熱時の熱応力によって金属間化合物とアルミニウムとの間で界面破壊が生じることが推察された。したがって、金属間化合物が生成するよりも低い 300 °C から 500 °C の温度域での接合界面の変化について詳細に調査した。すなわち、ピール強度が増大し始めてから金属間化合物が生成するまでの中間の温度である 400 °C での熱処理材に注目して接合界面の TEM 観察を行ない、圧延接合したままの試料と比較検討した。ここで、Fig. 3-2 で見たように 400 °C 熱処理材のピール強度は保持時間に依らずほぼ一定であったことから、TEM 観察用サンプルの熱処理条件としては、その初期過程である 400 °C, 300 s 保持の条件を選定した。

Figure 3-6 には接合界面の TEM 明視野像を示す。250 °C で圧延接合したままの接合界面 (Fig. 3-6 a) では、アルミニウム側に約 1 μ m の粒径を持つ等軸的で転位の整理された回復粒が見られる。同様に 16Cr ステンレス鋼の側には、接合界面近傍の約 1 μ m の範囲で、50 から 100nm サイズの微細なセル領域が見られる。さらに接合界面から 1 μ m 以上離れた部位では、厚さがおよそ 0.5 μ m で長さが 2.0 μ m 程度の伸長したセルからなる構造が観察される。Fig. 3-3 a) に示したアルミニウム側における材料流動も考慮すると、上に述べた界面近傍におけるステンレス鋼の組織的な特徴は圧延接合の際に両材料の界面近傍の部位が強いせん断加工を受けた痕跡と考えられる。一方で 400 °C, 300 s の条件で熱処理した接合界面 (Fig. 3-6 b) では、アルミニウム層のサブグレイン成長が進み、Fig. 3-3 e) に示した光学顕微鏡組織も考慮すると結晶粒径が数 μ m 以上の再結晶粒となっている。また 16Cr ステンレス鋼の側は圧延接合まま材と変わりなく、接合界面近傍に微細なセル構造がそのまま残存している。

Figure 3-7 には、さらに高倍率での TEM 明視野像を示す。Fig. 3-7 a) に示す圧

延接合まま材ならびに Fig. 3-7 b)に示す 400 °C, 300 s 熱処理材のいずれにおいても, アルミニウムと 16Cr ステンレス鋼との界面に, 複数の内部構造を持つ中間層の存在が確認される. この中間層は, 観察した全界面領域において均一に形成されており, 中間層の欠損や厚さの大きな変化は認められない. Fig. 3-7 a)の圧延接合まま材における中間層は, 全体が約 20 nm の厚さを持ち, その内部構造に注目してみると, 不均一に波打つ複数の層から構成されている. また Fig. 3-7 b)の 400 °C, 300 s の条件で熱処理した接合界面における中間層については, 圧延接合まま材と同様に, 全体が約 20 nm の厚さを持つが, その内部構造はより均一化しており, 波打ちの少ない平坦な層構造の中に, 島状の異相と思われる領域が点在する構造となっている.

Figure 3-8 には, 接合界面を横切る方向で TEM-EDS による注目元素のライン分析を行った結果を示す. ライン分析から見た中間層の厚さは, 圧延接合まま材で約 80 nm 以内, 熱処理材で約 60 nm 以内の範囲にあり, Fig. 3-7 の TEM 写真で観察される中間層の厚さ約 20 nm に比べて大きい. この原因として, Fig. 3-8 における測定分解能が, Fig. 3-7 の TEM 写真および後述する Fig. 3-10, 3-11 における測定分解能に比べて粗いために, 中間層の厚さを広く見積もっている可能性や, Fig. 3-8 で使用した薄膜試料の法線方向が接合界面に対して傾いていた可能性などが考えられる. それでもなお Fig. 3-8 の測定結果から, 中間層の厚さは, 圧延接合ままに比べて, 400 °C, 300 s の熱処理では拡大しないことが示唆される. さらに中間層には特徴的な酸素の存在が認められる. これは接合素材であるアルミニウムや 16Cr ステンレス鋼の表面に形成されていた酸化被膜に由来すると考えられる. この酸素は Fe や Al の濃度が変動する界面の範囲内に収まっており, 400 °C, 300 s の熱処理を経た後でも酸素原子の拡散消失などは起こっていない.

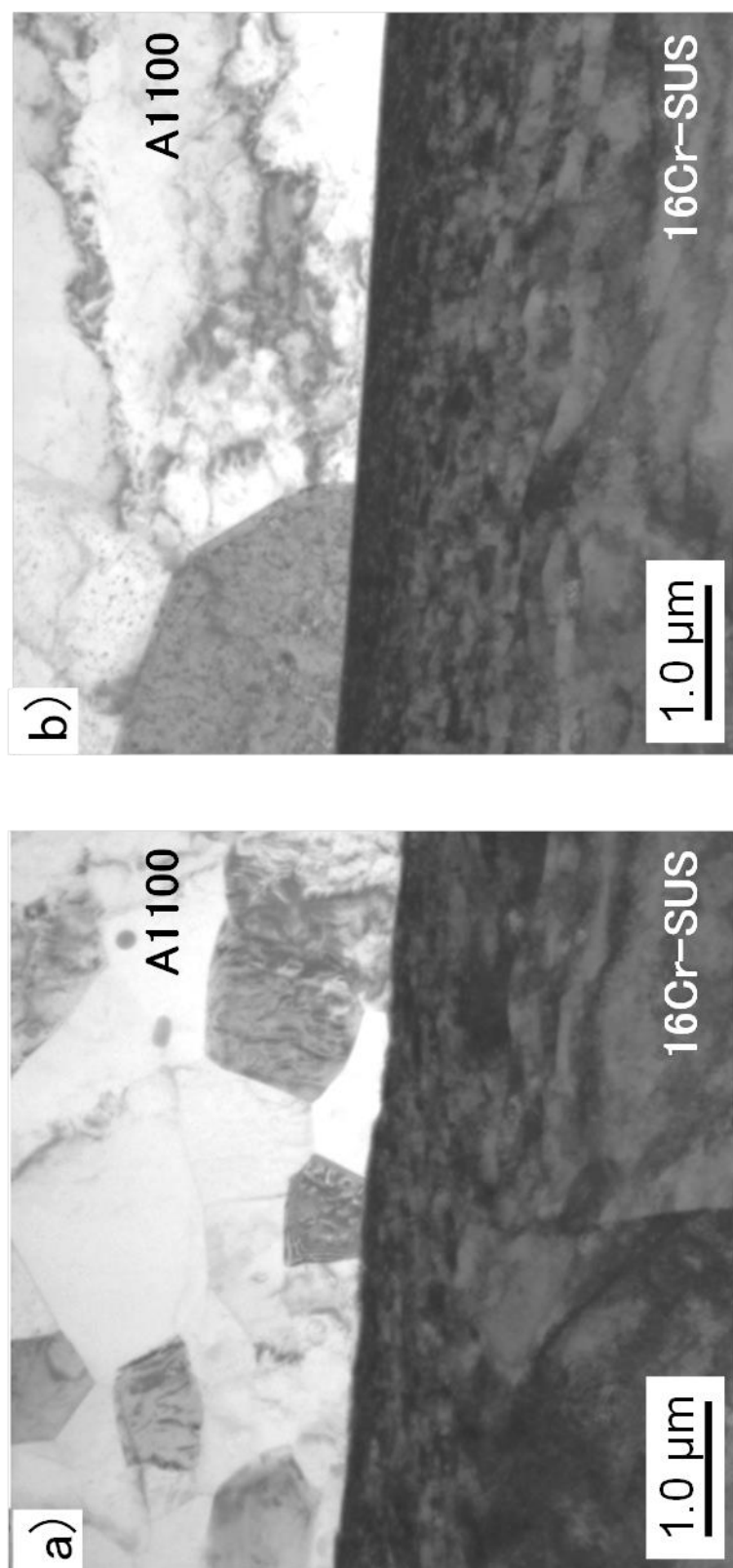


Fig. 3-6 TEM images of bonding interface between 16Cr-stainless steel and aluminum.

a) as rolled, b) 400°C, 300s heat treated

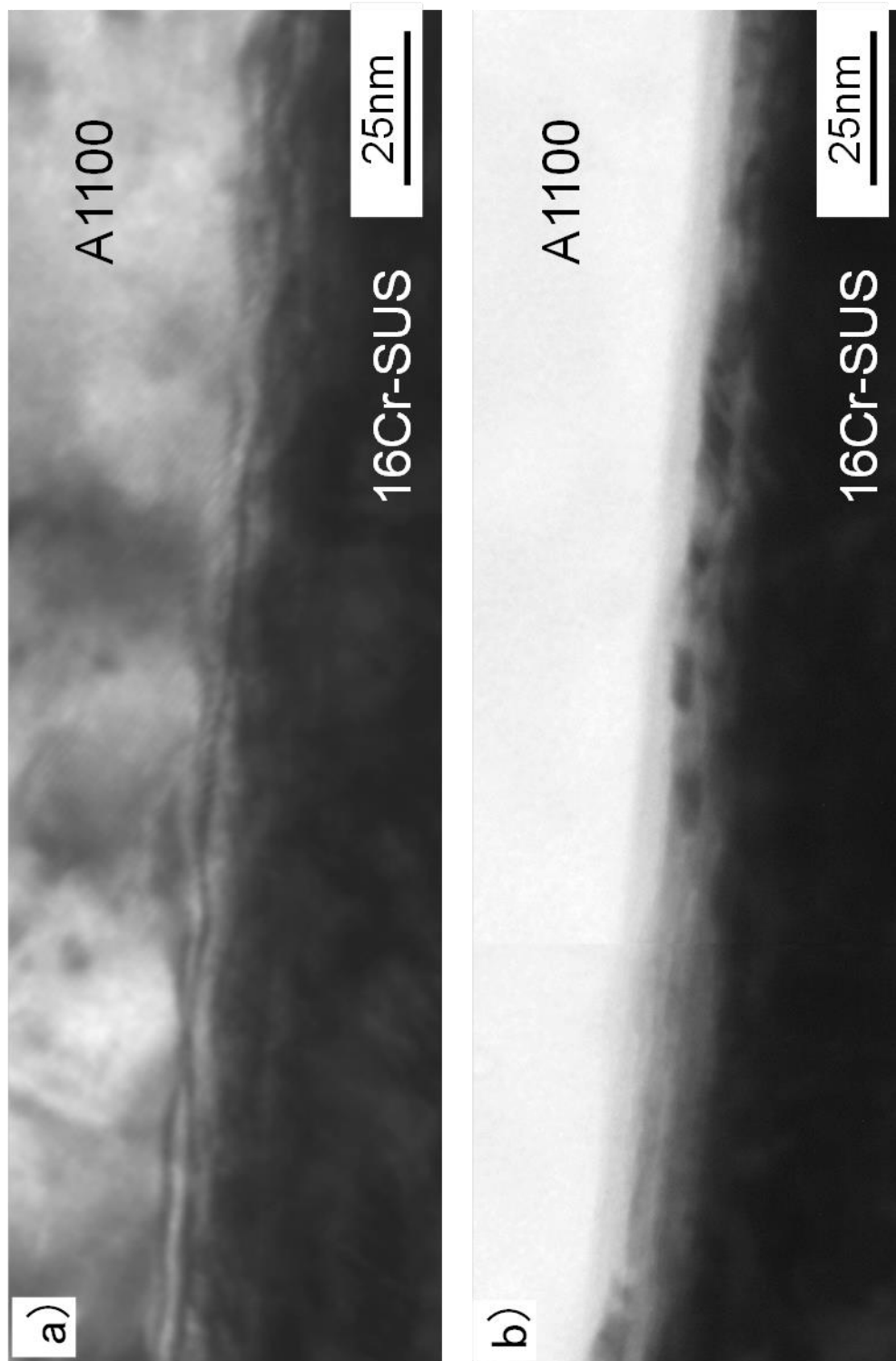


Fig. 3-7 Enlarged TEM images of bonding interface between 16Cr stainless steel and aluminum.

a) as rolled, b) 400 °C, 300s heat treated

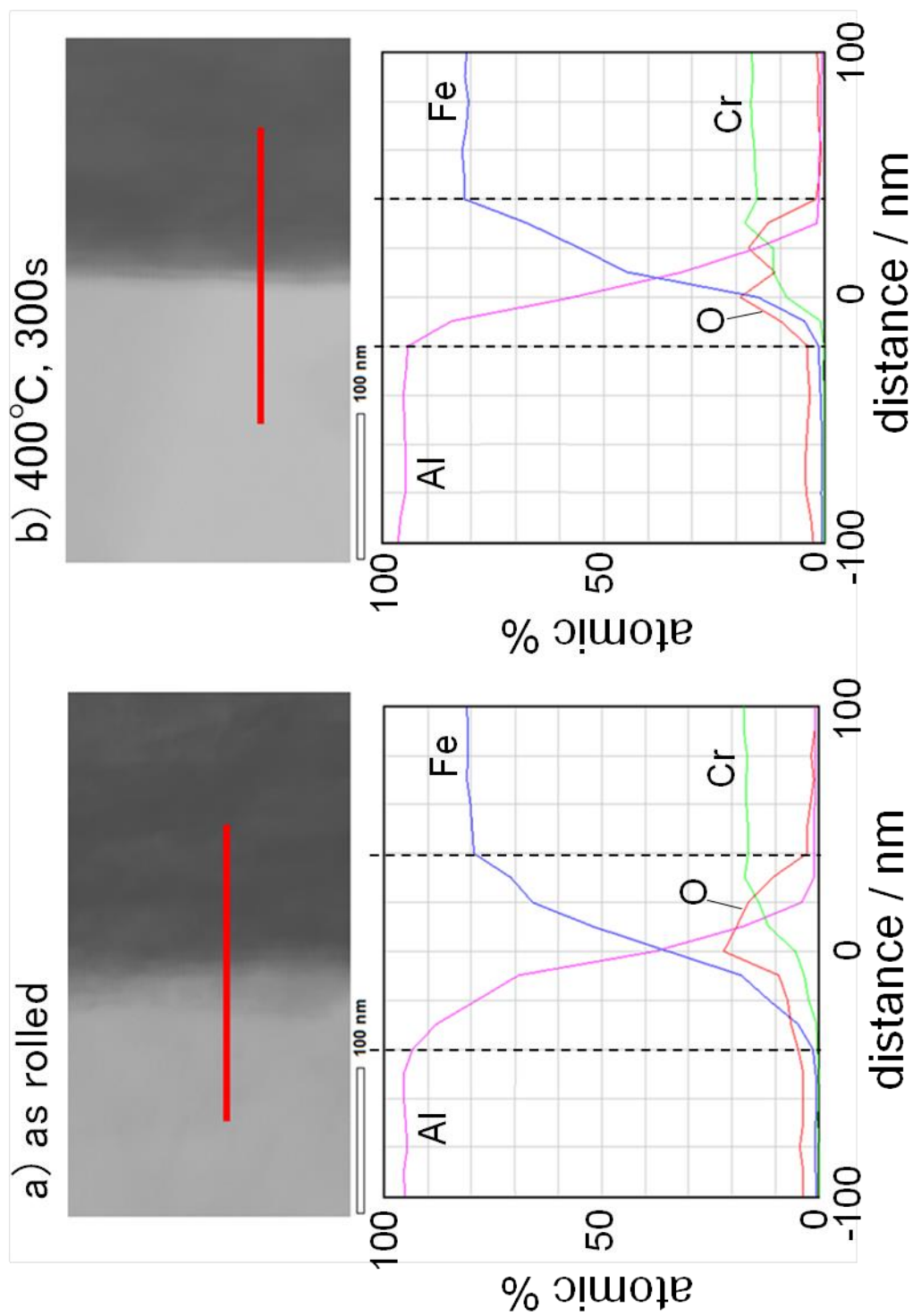


Fig. 3-8 Results of TEM-EDS line analysis across bonding interface between 16Cr-stainless steel and aluminum.

3.4 考察

3.4.1 熱処理による原子拡散の進行と金属間化合物の生成

Figures 3-4 および 3-5 で見たように, 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとのクラッド板に対して 550 °C 以上の温度で熱処理を行なうと, 接合界面に Fe-Al 系の金属間化合物が生成する. しかしながら Fig. 3-7 や 3-8 で見たように, 少なくとも 400 °C の熱処理温度では接合界面を大きく超えた原子拡散や中間層の明瞭な構造変化は生じていないように見える. そこで, 単純な系として Al-Fe 拡散対を対象とし, 中間層を介さずに直接接触させて熱処理した場合の Al と Fe の相互拡散挙動および金属間化合物の形成について, Thermo-calc/DICTRA による推定を試みた. 計算には DICTRA バージョン TC2017a を用い, 熱力学データベースとして SSOL5, 拡散データベースとして MOB2 を用いた. DICTRA に搭載された Homogenization モデルを使用し, FeAl 化合物内の拡散は金属 Al 中と等しいと仮定して計算している.

Figure 3-9 a) - c) には, 一例として 550 °C で 300 から 30000 s 保持する熱処理を行なった場合の界面近傍における元素濃度分布の計算結果を, また Fig. 3-9 d) には, 400~600 °C の各温度における金属間化合物の厚さの計算結果の保持時間にもともなう変化を示す. Fig. 3-9 a) - c) に示した濃度分布がプラトーを示す領域は, 各々 FeAl₃, Fe₂Al₅, FeAl₂ の金属間化合物の形成に相当し, 元の接触界面からアルミニウム側へ向かった金属間化合物の成長が見られる. この計算結果は, Fig. 3-4 の観察結果において, 高温かつ長時間の熱処理を行なった際に, μm オーダーでの原子拡散が進行した領域が, 金属間化合物の生成する領域として表われているとともに, Fig. 3-5 において, 熱処理時間にもなって Al/Fe 比が変化した様子が再現されている.

このように Fe-Al 拡散対においては, その相互拡散領域が金属間化合物の生成厚さとして表現されるため, 計算から得られた金属間化合物の厚さに及ぼす熱処理温度ならびに保持時間の影響を Fig. 3-9 d) に併せて示す. 解析初期に仮定した金属間化合物の厚さを無視すれば, 400 °C 以下の熱処理温度では, 長時間熱処理によって

もほとんど原子拡散は進行していない。実際に、Fig. 3-7 および 3-8 に示したように、400 °C のような低温での熱処理においては nm オーダー領域での原子拡散にとどまっており、金属間化合物の形成は観察されず、また熱処理の後でも中間層が極めて薄いまま維持されることと一致する。一方で、450 °C から 500 °C の熱処理温度においては、Fig. 3-9 d) から長時間熱処理によって厚さ数 μm の金属間化合物の生成が計算では予想される。しかし実際には、Fig. 3-4 に示したように、低温の 500 °C 以下の熱処理では 30000 s までの保持時間で界面に金属間化合物の形成は見られなかった。これは、酸素を含む中間層が相互拡散を著しく遅延させる効果を有することを示唆する。すなわち、450 °C から 500 °C の長時間熱処理においては、酸素を含む中間層が大きな拡散障壁としての役割を果たしていることを示唆する。550 °C の熱処理温度においては、保持時間 3000 s では 4 μm の、保持時間 30000 s では 10 μm 強の厚さで金属間化合物の生成が予測され、Fig. 3-4 での観察結果とほぼ一致する。したがって、中間層の拡散バリアーとしての役割は、温度とともに大きく変化すると思われる。詳細な機構については、今後の課題と考える。さらに熱処理温度が 600 °C に達すると、計算結果ではさらに金属間化合物の厚さが増すと予測されるが、Fig. 3-4 の結果からは保持時間にかかわらず、金属間化合物の厚さは約 6 μm と一定であった。これは前述したように熱処理の加熱途中で成長した金属間化合物が目標温度に到達する以前に熱応力により界面剥離してしまい、それ以上には金属間化合物の厚さが成長できなかったためと考えられる。

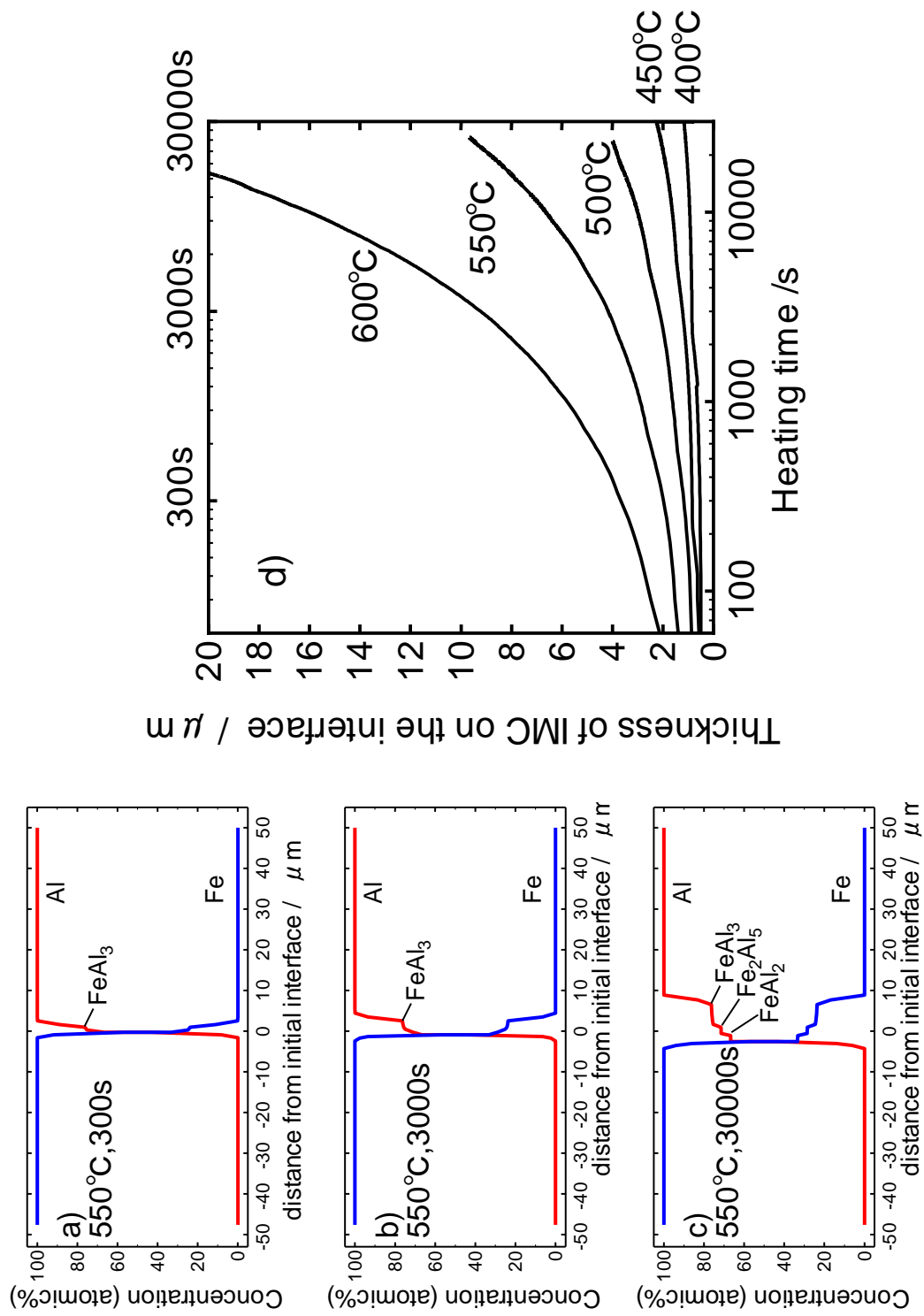


Fig. 3-9 Results of Thermo-calc / DICTRA calculation of mutual diffusion behavior in Al-Fe diffusion couple.

3.4.2 接合界面に見られる中間層の構造について

Figure 3-10 には約 250 °C で圧延接合したままの接合界面について、高分解能 TEM 明視野像と明視野像における各場所での TEM μ -EDS による点分析の結果を示す。図中の a で示す点はアルミニウム母材組成を、また f で示す点は 16Cr ステンレスの母材組成を示すことから、中間層の厚さは約 20nm であり、それを超える範囲への原子拡散が生じていないことがわかる。中間層に相当する b~e の位置の μ -EDS スペクトルには酸素のピークが認められる特徴がある。この酸素は、母材アルミニウムに近い側(c)においては明瞭な電子線回折パターンを示さなかったことから、アモルファスの Al 酸化物として存在すると考えられる。一方、母材 16Cr ステンレスに近い側(d)では微量の Cr を含む AlFeO_3 の回折パターンが確認された他、別の部位では微量の Cr を含む Fe_3O_4 や FeAl_2O_4 が確認された。このことから、圧延接合したままの接合界面に存在する中間層は、様々な組成と形態を持つ金属酸化物の集合体として存在すると考えられる。

Figure 3-11 には 400 °C, 300 s の条件で熱処理した接合界面について、高分解能 TEM 明視野像と、明視野像における各場所での TEM μ -EDS による点分析の結果を示す。図中に a と f で示す位置は各々アルミニウム母材と 16Cr ステンレス母材の組成を示すことから、中間層の厚さは圧延接合まま材と同様に約 20nm であり、400 °C の熱処理を経た後でも中間層を超える範囲への原子拡散は認められない。中間層に相当する b~e の位置では、圧延接合まま材と異なり、中間層内の c の位置において α -Fe の回折ピークが確認された。一方で EDS スペクトルには Al のピークが明瞭に認められるものの回折パターンからは Al の存在を示すパターンが見られない (b, c, d)。したがって、Al はアモルファス酸化物として存在すると考えられる。

以上より、圧延接合ままの接合界面には主に Fe と Al および微量の Cr と酸素とが混合した様々な形態の酸化物が存在し、その混在によって複雑に波打つ形態で複数の構造を持つ中間層が構成されていたと思われる。一方、圧延接合の後に 400 °C, 300s の熱処理を施すと、熱処理前に存在した Fe や Al を含む混合酸化物のうち、Al が酸素と強く結びつくことによって Al のアモルファス酸化物が支配的となり、

複数の均一な層構造を持つ中間層として再構成されと考えられる．また，Feを含む酸化物は一部 Al により還元され α -Fe として中間層中に島状に残存し， α -Fe の回折パターンを示したと推察する．

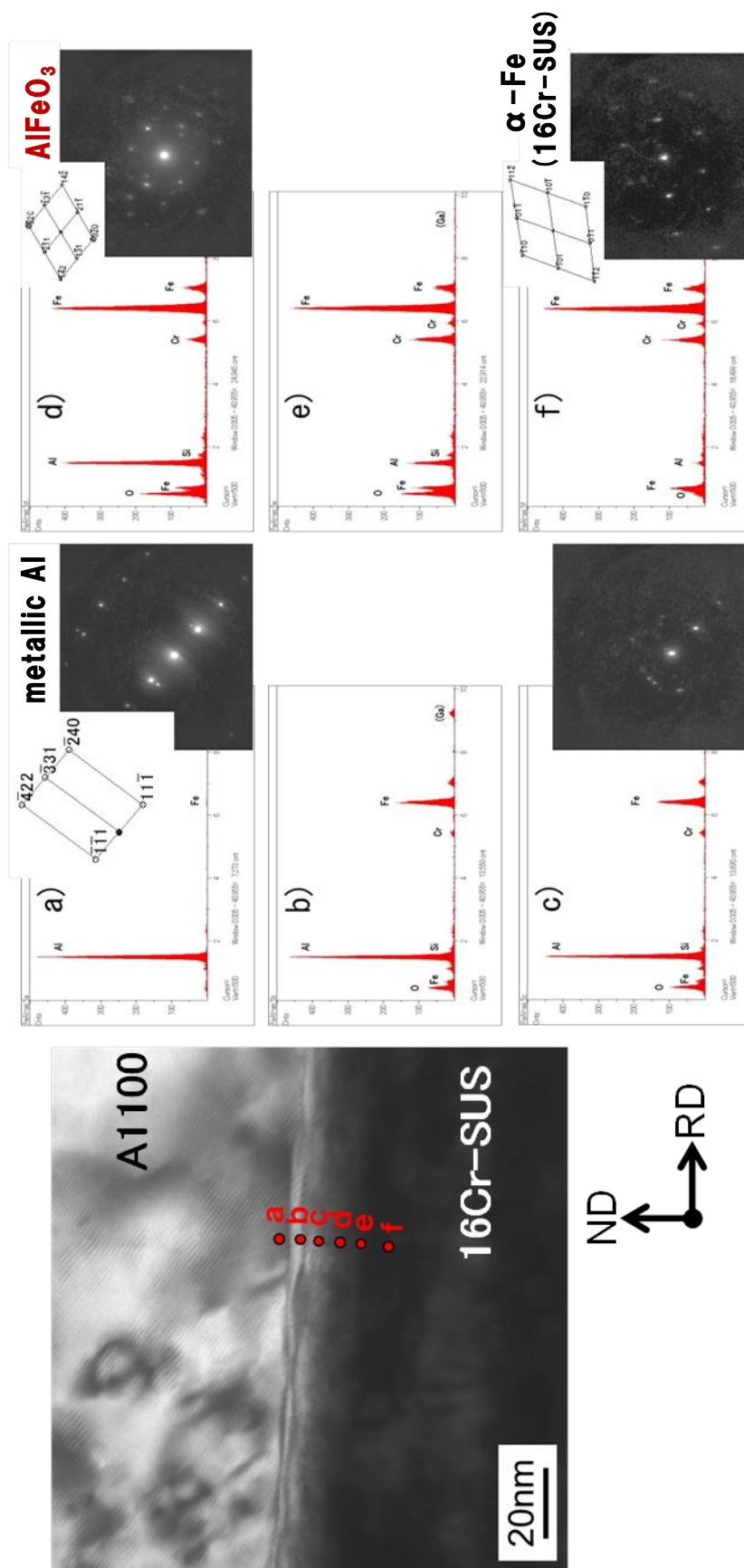


Fig. 3-10 TEM image near bonding interface and result of TEM- μ EDS spot analysis (as rolled specimen).

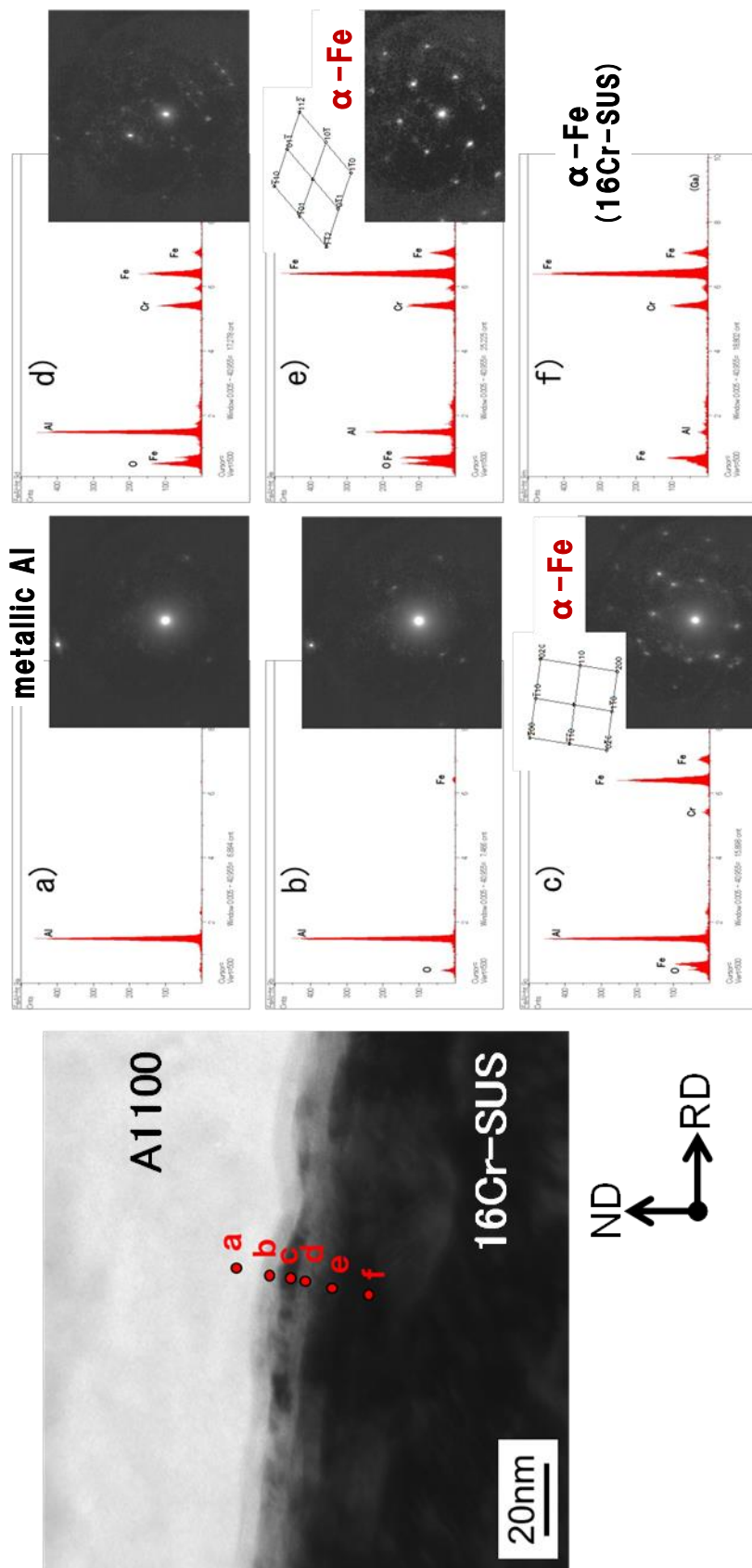


Fig. 3-11 TEM image near bonding interface and result of TEM- μ EDS spot analysis results (400°C, 300s heat treated specimen).

3.4.3 中間層の生成原因と熱処理による再構成

ステンレス鋼およびアルミニウムはいずれも、大気中で強固な不動態被膜を形成する金属である。その酸化被膜厚さは熱処理条件によって変化するが、例えば低酸素分圧下で 400～600 °C に加熱された SUS430 鋼の酸化被膜厚さは 10～43 nm⁸⁾、大気中で長期間放置された A1070 アルミニウムの酸化被膜厚さはおよそ 20 nm⁹⁾とされ、いずれも数十 nm 程度である。本研究で用いたクラッド板は、約 250 °C で圧延接合されているが、それぞれの不動態被膜が加熱大気中において極めて安定であることを考慮すれば、いずれも数十 nm の薄い被膜として存在すると考えられる。

例えば冷間圧延接合過程においては、圧延中の材料展伸によって表面硬化層が破断して新生表面が現出することが報告されている²⁾ことから、同時に酸化被膜が破断する可能性も考えられる。しかし、Fig. 3-7 で見たように、実際の接合界面には酸化物からなる中間層が切れ間なく均一に存在していることから、素材表面の酸化被膜は圧延中に破壊されることなく材料とともに展伸してその表面を覆ったまま接合されたと考えるのが妥当である。すなわち、中間層の酸化物は異種金属のバインダーの役割を有すると推定される。及川ら⁵⁾は SUS304 オーステナイト系ステンレス鋼と A1050 アルミニウムとを 450 °C の温度で大気中で熱間圧延接合した材料について、その接合界面にはアルミニウムの非晶質酸化膜と Cr の結晶酸化膜からなる中間層が存在し、これら酸化膜を介して両材料が接合されているとしている。本研究における 16Cr フェライト系ステンレス鋼とアルミニウムとの圧延接合材の接合界面には、Cr の結晶酸化膜が見られないが、主にアルミニウムの非晶質酸化膜と (Fe, Cr, Al) 系の酸化物が接合に寄与していると考えられる。

接合界面に見られる中間層は約 20 nm の厚さを持ち、複数の層構造を成して存在するが、これは、圧延接合の際に両素材の接合面同士が相対すべりを起こしながら互いを平滑化し、各々の酸化被膜と母材粒子を巻き込みながら一体化して形成されたと考えられる。圧延接合の直後には、これらの酸化物が混在した状態で不均一な層構造を持つ中間層を構成し、この中間層を介して接合が達成されていると考えられる。その後、クラッド板に対して 300 °C から 500 °C の温度範囲で熱処理を施す

と、中間相中の Fe や Al を含む混合酸化物のうち、Al が酸素と強く結びつくことによって Al のアモルファス酸化物が形成されて複数の均一な層構造を持つ中間層が再構成され、また一方の Fe 系酸化物は Al により還元されて α -Fe となって中間層中に島状に残存する。この様に再構成された中間層は、圧延接合したままの不均一な構造に比べて安定と考えられることから、300 °C から 500 °C の熱処理によるピール強度増大に対して何らかの形で貢献していると推定される。ここで 500 °C 以下の熱処理温度では、中間層を超えて母材にまで至る原子拡散は起こらず、中間層の消失や厚さの変化も起こらない。すなわち、酸素を含む中間層は熱処理温度が低い（500 °C 以下）場合には異種金属の相互拡散の障壁となる役割をもち、脆い金属間化合物の形成を抑制する効果も併せ持つと推察される。

さらに熱処理温度が上昇して 550 °C を超えると、中間層を超えた原子拡散が進行するようになるが、原子拡散が進行するとすぐに θ -FeAl₃ からなる金属間化合物が形成される。この金属間化合物は脆いために、加熱によって周辺のアルミニウムとの間に生じる熱膨張差に起因した引っ張り応力に耐えることができず、金属間化合物層とアルミニウムとの間で界面破壊を生じてピール強度の急激な低下を招いたと考えた。

3.5 結言

16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとを約 250 °C で圧延接合したクラッド板に対して 200 °C ~ 600 °C の熱処理を行ない，熱処理条件にともなう接合界面の構造変化を調査した結果，以下の知見を得た．

1) 圧延接合したままのクラッド板の接合界面には，厚さ約 20 nm の中間層が存在する．この中間層は全面に均一に形成されており，中間層の欠損や大きな厚さの変化は認められない．また中間層はクラッド接合母材の主たる構成元素である Fe や Al の他に酸素を含み，様々な酸化物が混合した不均一に波打つ複数の層から構成されている．

2) クラッド板を接合圧延後に 300 から 500 °C の温度で熱処理すると，接合強度が増す．中間層は，主に Al アモルファス酸化物からなる厚さが 20 nm の均一な層であり，その内部に島状に分離した α -Fe を含む中間層へと再構成される．ただしこの熱処理の前後で，中間層の消失や中間層を超えた相互拡散は起こらず，中間層の厚さは変化しない．さらに熱処理温度を上昇すると接合強度が増すが，550 °C 以上となると接合界面には θ -FeAl₃ や η -Fe₂Al₅ の金属間化合物が 10 μ m 前後の厚さで生成し，金属間化合物とアルミニウムの間で界面剥離を生じる．

3) 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムの界面に存在する酸素を含む中間層は，両金属のバインダーとしての役割と同時に，500 °C 以下での熱処理における異種金属元素の相互拡散障壁としての役割を有すると推察した．

3 章の参考文献

- 1) T.Okui and K.Ushioda: Tetsu-to-Hagane, 105(2019), 38.
- 2) H.R.Akramifard and H.Mirzadeh and M.H.Parsa: Mater. Sci. Eng. A, 613(2014), 232.
- 3) T.Kawano and M.Matui and K.Nishio and M.Katoh and M.Hirata: Q. J. Jpn. Weld. Soc., 22-2(2004), 291.
- 4) T.Kawano and M.Matui and K.Nishio and M.Katoh and M.Hirata: Q. J. Jpn. Weld. Soc., 22-2(2004), 300.
- 5) H.Oikawa and T.Saitou and T.Yoshimura and T.Nagase: Tetsu-to-Hagane, 83 (1997), 629.
- 6) Y.Ruan and N.Yan and H.Z.Zhu and K.Zhou and B.Wei: J. Alloy. Compd, 701(2017), 676.
- 7) T.Tsukahara and N.Takata and S.Kobayashi and M.Takeyama: Tetsu-to-Hagane, 102 (2016), 89.
- 8) C.J.Greyling and J.P.Roux: Corros. Sci., 24-8(1984), 675.
- 9) 気孔防止研究委員会 研究報告書 第Ⅱ編, 軽金属溶接, 19(1981), 64.

第 4 章 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの圧延クラッド材の熱処理によるピール強度変化と強度発現機構

4.1 緒言

これまで第 3 章¹⁾では、圧延法で接合された 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとのクラッド板について、接合界面の微細構造を調査し、圧延接合したままの接合界面には厚さ約 20 nm の中間層が存在し、この中間層は様々な酸化物が混合した不均一に波打つ複数の層から構成されていることを示した。さらにこのような圧延接合したクラッド板を熱処理すると次のような変化が生じることを述べた。すなわち、圧延接合後のクラッド板を 300 から 500 °C の温度で熱処理すると、中間層が、主に Al アモルファス酸化物からなる厚さ約 20 nm の均一な層と、その内部に島状に分離した α -Fe へと再構成される。さらに 500 °C 以上の温度で熱処理すると、接合界面には θ -FeAl₃ や η -Fe₂Al₅ の金属間化合物が 10 μ m 前後の厚さで生成し、金属間化合物とアルミニウムとの間で界面はく離を生じる。また同様に第 3 章において、圧延接合したクラッド板およびその熱処理材の接合強度をピール試験で評価した結果、圧延接合したままの状態と 200 °C 熱処理材とではピール強度に変化が無い。しかし、300 °C の熱処理によってピール強度は明瞭に増大し始め、450~500 °C で最大を迎える。さらに 500 °C 以上で長時間の熱処理を行なうと一部でピール強度の急激な低下が見られるようになり、600 °C ではピール強度が急激に低下する。500 °C 以上の温度におけるピール強度の急激な低下は、上記したようにその接合界面に脆い金属間化合物が生成したためと理解できる。一方 300~500 °C の熱処理によるピール強度の増大については、接合界面に見られる中間層が両金属のバインダーとしての役割を持つと同時に、500 °C 以下での熱処理における異種金属元素の相互拡散障壁として Fe/Al 金属間化合物の形成を抑制する役割を有するためと推察した。

1.4 節で述べたとおり、ステンレス鋼と Al、もしくは Fe と Al の圧延接合体およびその熱処理材の接合界面構造と接合強度に関しては、以下のような研究がある。

例えばアルミニウムと軟鋼とを真空中で約 500°C に加熱して圧延接合した材料に

については、素材アルミニウムの表面に存在した脆性な酸化被膜が圧延加工中の展伸によって破壊され、新生面が露出した部位で接合が生じると考えられてきた²⁾。また接合前にブラッシング処理した SUS304L ステンレス鋼と A1050 アルミニウムとを冷間圧延接合した例では、ブラッシング処理によって素材 304L ステンレス鋼の表面に形成された加工硬化層がクラックを生じて新生面を露出し、その谷部に軟質なアルミニウムが侵入して接合するとされている³⁾。これらの接合機構はいずれも素材表面に存在した酸化被膜の破壊と新生面の露出を前提としているが、第 3 章で得られた結果から、その接合界面には酸化被膜に由来する中間層が切れ間なく存在しており、また金属同士の接触による接合の痕跡が認められなかったことから、酸化被膜の破壊および新生面の露出による接合機構は否定される。

また、SUS304L ステンレス鋼と A3003 アルミニウム合金の素材を 500 °C に加熱した真空圧延においては、圧延接合中の摩擦熱によって接合界面近傍の一部が一旦熔融することによって接合する機構が提案されている⁴⁾。さらに同クラッド板を圧延接合した後に 500°C で短時間熱処理すると、A3003 中の Cu 及び Si の高濃度域が選択的に熔融して形成されたマダラ組織を起点とした微細柱状組織を介して原子拡散が進行する結果、接合強度が上昇する⁵⁾と解析されている。これとは別に、SUS304 オーステナイト系ステンレス鋼と A1050 アルミニウムとを 450 °C の温度で大気中にて熱間圧延接合した材料については、その接合界面にアルミニウムの非晶質酸化膜と Cr の結晶酸化膜からなる中間層が存在し、また Cr 酸化物と Al 酸化物が固溶体を形成し易く親和性が良いと考えられることから、これら酸化膜を介して両材料が接合されていることが示されている⁶⁾。同クラッド板に対しては、圧延接合の後に 400 °C から 600 °C の温度で熱処理した際に生じる金属間化合物によってピール強度が低下する機構が、金属間化合物相の厚みと接合界面の観察結果に基づいて考察されている⁷⁾。

しかしながら、圧延接合体の熱処理に伴う接合界面の構造変化と接合強度との関係、特に約 250°C と比較的低温で圧延接合した後の 300 から 500 °C の熱処理温度範囲におけるピール強度の増大原因については、これまで界面剥離破面の詳細な観察に基づいた検討例に乏しく、また接合機構についても必ずしも明らかとなっていない

い.

一方，拡散接合や圧延接合による接合部位の接合強度を評価する方法としては，接合面を法線方向に引っ張って破壊荷重を評価する方法や，接合面と平行にせん断荷重を加えてせん断破壊荷重を測定する方法などがある．しかし，圧延接合した薄肉のクラッド板では，垂直引っ張り破壊やせん断破壊などの試験方法を採用することができないため，例えば JIS で規格化されたようなピール試験⁹⁾が実質的に唯一の評価手段となる．ピール試験による接合強度評価法は，実用的には優れた評価方法であるが，接合面の単位面積当たりの接合強度を正確に評価することができない本質的な欠点がある．

本報⁸⁾では，クラッド板を 300 から 500 °C で熱処理した場合にピール強度が増大する現象に焦点を絞り，その原因を界面での破壊面に注目して解析するとともに，ピール試験方法が持つ特徴を考慮したピール強度発現機構について考察することを目的とした．

4.2 実験方法

調査には第 3 章と同じく，16Cr ステンレス鋼と A1100 アルミニウムとを接合した二層のクラッド板を用いた．各々の代表的な化学組成は Table 4-1 に示すとおりである．素材となる 16Cr ステンレス鋼には大気焼鈍の後に酸洗したコイル材を用い，あらかじめその接合面を砥粒入りナイロンブラシでブラッシング処理して清浄化した．もう一方の素材であるアルミニウムには JIS H 4000 に規定された 1100 アルミニウム（以下 A1100 と表記する）の調質仕様 H24 のコイルを前処理なしで用いた．圧延接合にはワークロール径が ϕ 250 mm の 4 段圧延機を用い，圧延機の入側に配置した素材コイルを大気中でインライン加熱し，重ね合わせて圧延接合した．圧延ロール直前での素材コイル温度は両素材ともに約 250 °C，接合は 1 パスの圧延で行ない，全板厚を合計した圧下率は 21.4% である．圧延接合を完了した時点の厚さは，16Cr ステンレス鋼が 0.55 mm，A1100 アルミニウムが 1.50 mm であり，合計して 2.05 mm である．このように製造した二層クラッド板に対して圧延

接合後に熱処理を行ない試験に用いた。

熱処理のためには接合したクラッド材から切り板サンプルを採取し、その一部を 200～600 °C の電気加熱炉で 300～30000 s 保持した後に、炉から取り出して空冷する熱処理を行なった。

クラッド板のピール試験は、JIS K6854-3 (接着剤－はく離接着強さ試験方法－第 3 部：T 型はく離)⁹⁾ に類似した方法で行った。試験片は引っ張り方向が接合時の圧延方向に対して垂直な方向を長辺として 10 mm 幅×150 mm 長さとし、幅方向の端面は切断時の影響を除去するために切削仕上げした。得られた試験片について長手方向の片側端部を機械的に強制はく離して Fig. 4-1 に示す T 字型試験片とし、分離したステンレス鋼とアルミニウムのそれぞれを引っ張り試験機のつかみ具にチャッキングして、クロスヘッド速度 150 mm/min の条件で引き剥がした。接合強度は、その際のクロスヘッド荷重の平均値を試験片幅で除した値を用いて、単位幅あたりのピール強度($\text{N} \cdot \text{mm}^{-1}$)と定義し算出した。

ピール試験を終えたサンプルの 16Cr ステンレス側とアルミニウム側の両方から、はく離面サンプルを採取し、SEM (Scanning Electron Microscopy) を用いて破壊面を観察した。観察は二次電子像 (SE (Secondary Electron) image) による形態観察とともに、反射電子組成像 (compositional image in BSE (Back Scattered Electron) mode) を画像解析することにより、各々のはく離面への異物付着量を算出した。

また、はく離面のアルミニウム側に観察された薄片状の付着物については、その断面を含む薄膜試料を作製し、FE-TEM (Field Emission - Transmission Electron Microscopy) を用いて観察した。FE-TEM 用の薄膜試料は、薄片とともにアルミニウム母材を含む断面となるように Ga イオンによる FIB (Focused Ion Beam) -マイクロサンプリング法によって採取した。この際、FIB 加工時の熱によって特にアルミニウムが変質することを極力避けるために、クライオ FIB 装置を使用した。表面保護のためには、最表面に約 50 nm 厚さで C 蒸着した後に FIB により C デポジット処理を施している。接合界面の微細構造観察においては、接合界面を横断する部位についてマイクロ電子線回折 (μ -electron diffraction) による構造解析と μ -EDS

(Energy Dispersive X-ray Spectrometry) による元素分析を行い、物質の同定を行った。

Table 4-1 Typical chemical compositions of 16Cr-stainless steel and A1100 aluminum used.

16Cr-stainless steel					(mass%)
C	N	Si	Mn	Cr	Fe
0.008	0.011	0.55	0.45	16.4	bal.

A1100 aluminum					(mass%)
Si	Fe	Cu	Mn	Al	
0.10	0.58	0.13	0.01	bal.	

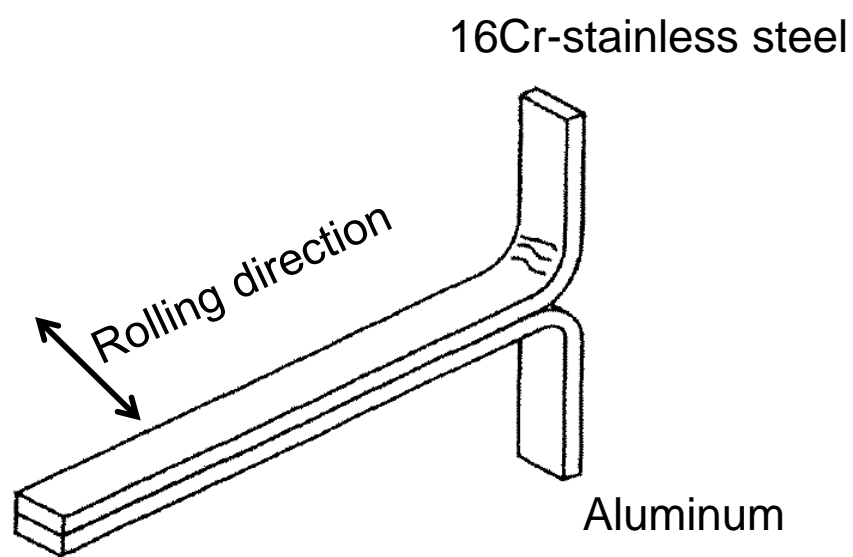


Fig. 4-1 Shape of specimen used for peel strength test.

4.3 実験結果

4.3.1 ピール試験後のはく離面の SEM 観察結果

Figure 4-2 には，圧延接合まま材，ならびに圧延接合の後に 300 °C と 400 °C の温度で 300 s の熱処理を行なった試料について，ピール試験後のはく離面の 16Cr ステンレス側を SEM 観察した結果を示す．各々の二次電子像 (Fig. 4-2 a) ~ c)) には，網目状の構造が見られ，その網目構造が，対応する反射電子組成像 (Fig. 4-2 d) ~ f)) においては黒く観察される．例えば，Fig. 4-2 f)) において矢印で示した部位は SEM-EDS スペクトル (Fig. 4-2 g)) において Al のピークのみが観察されたことから，網目構造は 16Cr ステンレス上に付着した金属アルミニウムと判断できる．このアルミニウム付着を伴う網目構造は，熱処理温度の上昇によって網目の大きさはほとんど変化しないものの，アルミニウムの付着した幅が太くなり，反射電子組成像の画像解析から得られるアルミニウム付着の面積率が増大した．

Figure 4-3 には，Fig. 4-2 と同一のピール試験における，もう一方のはく離面であるアルミニウム側について，SEM 観察した結果を示す．アルミニウム側にも Fig. 4-2 と同様に網目構造が見られ，対応する反射電子組成像 (Fig. 4-3 a) ~ c)) には黒く観察されるアルミニウム母材が確認できる．また網目構造の内側には，部分的に白く観察される部位が見られた．例えば，Fig. 4-3 f)) において矢印で示した白く観察された部位は，SEM-EDS スペクトル (Fig. 4-3 g)) から Fe や Cr などを含む付着物であることが確認された．また反射電子組成像の画像解析から算出した付着物の面積率は，熱処理温度の上昇に伴って減少した．

Figure 4-4 には，ピール試験後のはく離面を SEM 観察する際に，界面剥離の実態をより明瞭に把握することを目的に試料の圧延方向を回転軸として TD 方向へ 50 度の傾斜を与えた場合の二次電子像を示す．同図から，はく離面に見られる網目構造は，アルミニウムの延性破壊によるディンプル構造からなり，そのディンプル高さが熱処理温度の上昇に伴って高くなる様子が明瞭に観察される．すなわち，はく離面に見られる網目構造は，ピール試験の際に接合界面近傍のアルミニウムが母材

破壊した痕跡であって、**16Cr** ステンレス側のはく離面に付着したアルミニウムの面積率を測定することによって、全面積の破壊形態に占めるアルミニウム母材破壊の面積率を直接的に測定できることが分かる。また **Fig. 4-4** のアルミニウム側において、図中に矢印で示すように、ディンプル構造の底部には薄片状の付着物が散在している状況が認められる。この付着物は、**Fig. 4-3** の反射電子組成像において白く観察された部位に相当するが、**SEM** 写真からはその構造について詳細な情報を得ることができない。そこで、この薄片状の付着物について、断面試料を作製し **FE-TEM** を用いて観察した。

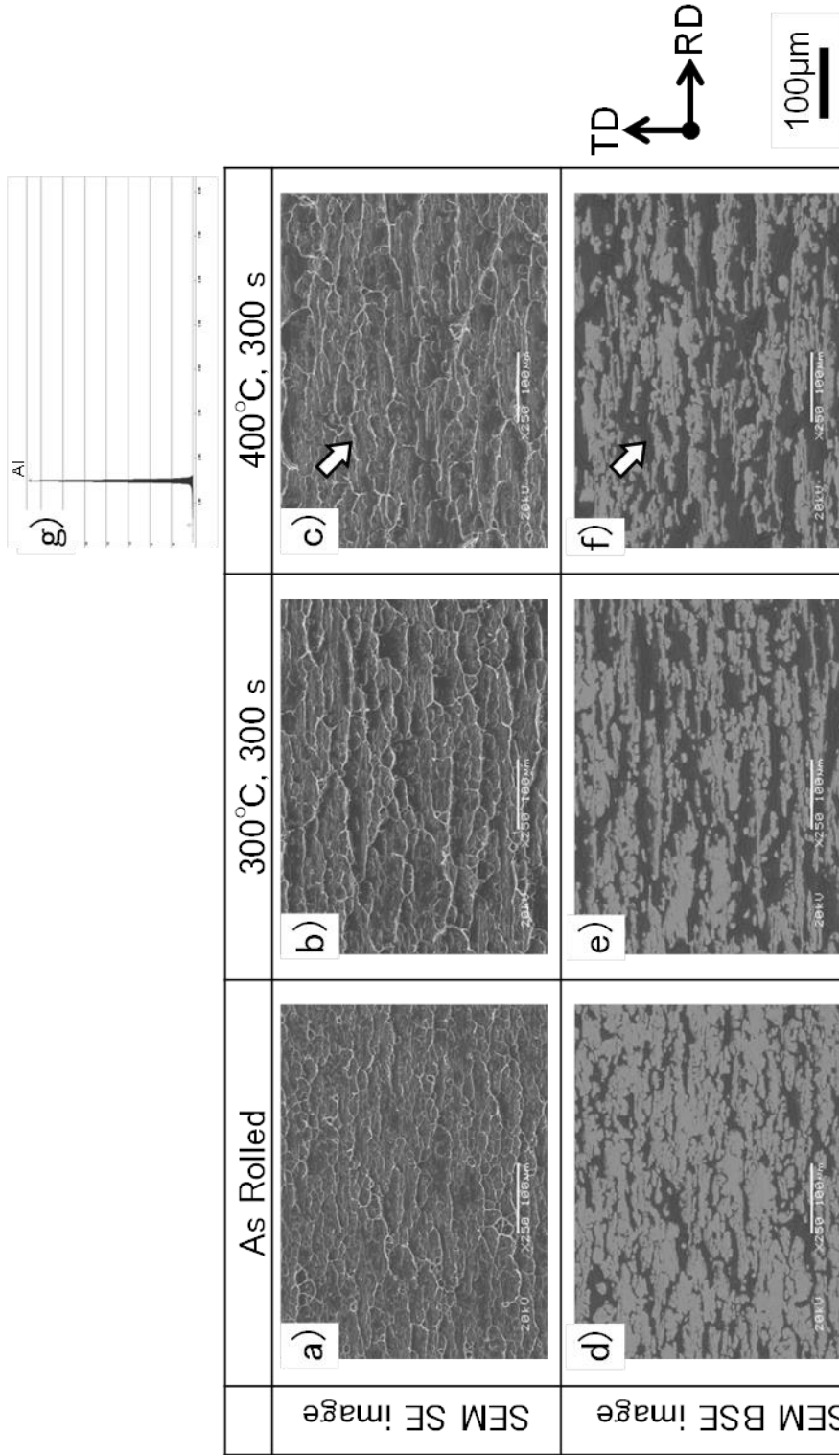


Fig. 4-2 SEM secondary electron (a to c)) and back scattered electron (d to f)) images showing fracture surface after the peel test when observed from the 16Cr-stainless steel side. Arrows indicate the black area in f), where the EDS spectrum in g) is obtained.

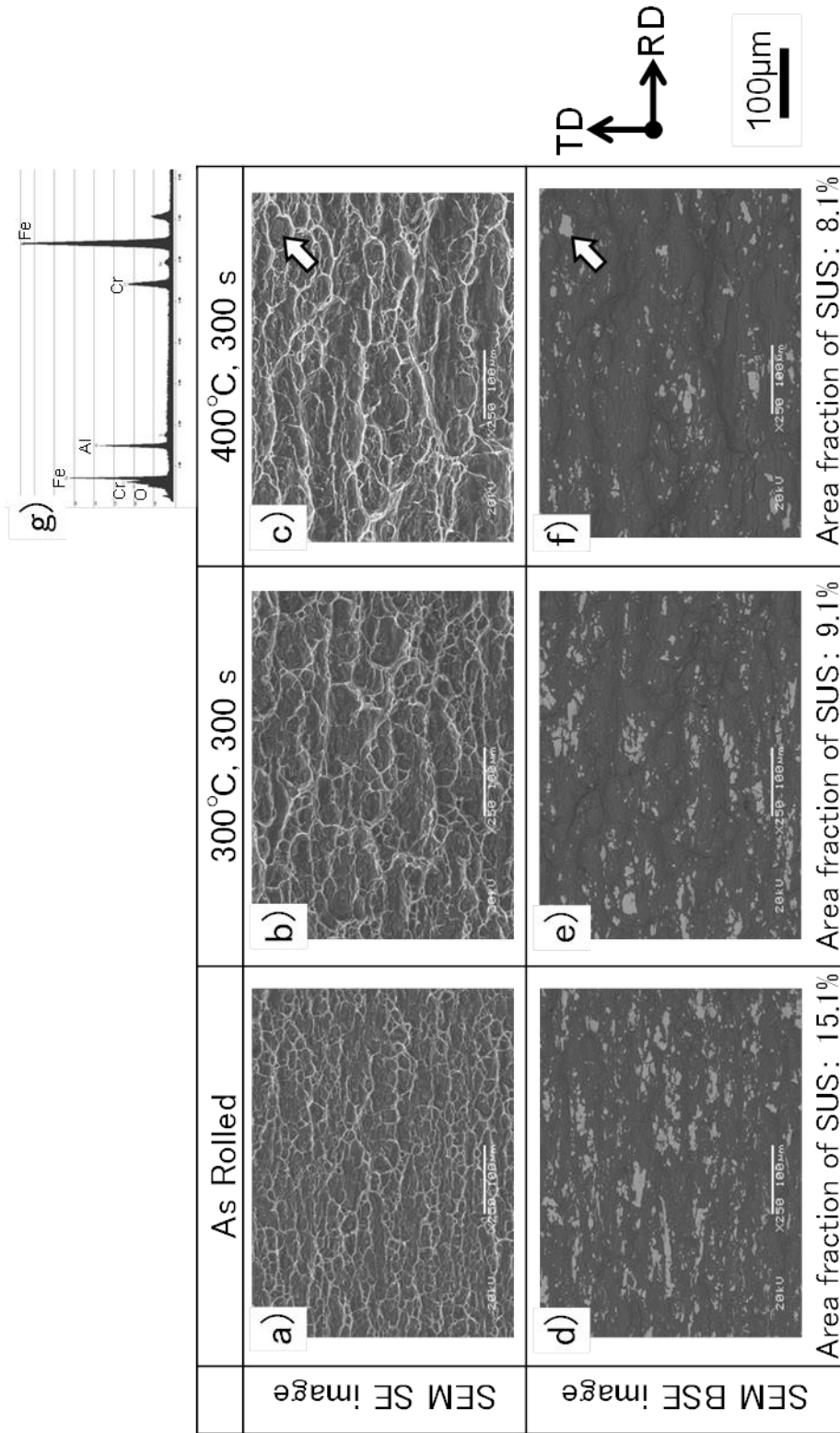


Fig. 4-3 SEM secondary electron (a to c) and back scattered electron (d to f) images showing fracture surface after the peel test when observed from the aluminum side. Arrows indicate the white area in f), where the EDS spectrum in g) is obtained.

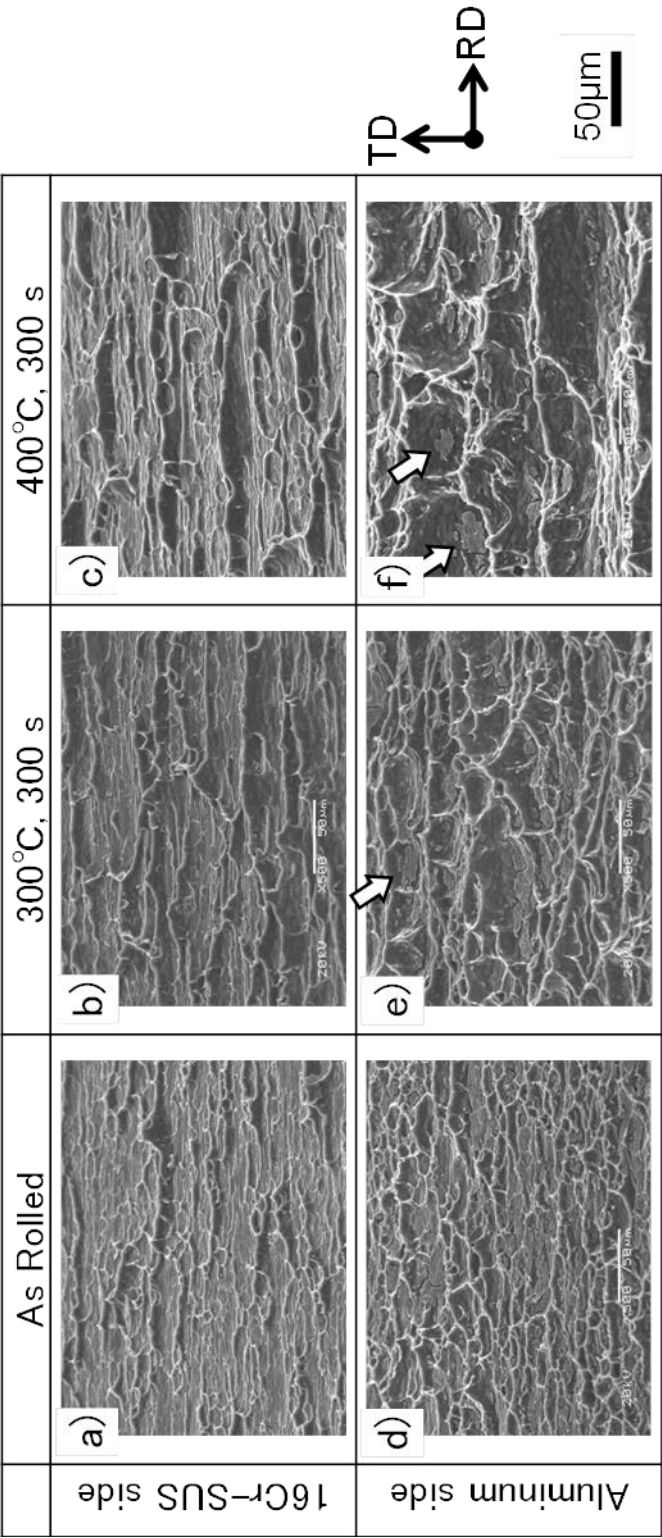


Fig. 4-4 SEM images of fracture surface after the peel test when specimens are tilted by 50 degrees along the rolling direction. Arrows indicate the flake-like deposits in the bottom of aluminum dimple when the fracture surface is observed from the aluminum side.

4.3.2 ピール試験後のはく離面に見られた薄片状付着物の TEM 観察結果

Figure 4-5 は、圧延接合の後に 400 °C で 300 s の熱処理を行なったクラッド板についてピール試験を行ない、そのはく離面のアルミニウム側に観察された薄片状の付着物 (Fig. 4-5 a) の SEM 像) について、断面 FIB サンプルを作製し、FE-TEM で観察した明視野像である。Fig. 4-5 b) の上部に白く見える部分は、粒径が約 1 μm の微細結晶粒からなる金属アルミニウムである。一方の黒く見える部分は、全体の厚さが約 1 μm の 16Cr ステンレスからなる薄片で、その内部には 50 から 100 nm サイズの微細なセル構造が確認できる。第 3 章において、接合界面近傍の 16Cr ステンレスには、界面から約 1 μm の範囲で、50 から 100 nm サイズの微細なセル領域が見られ、さらに接合界面から 1 μm 以上離れた部位では、厚さがおよそ 0.5 μm で長さが 2.0 μm 程度の伸長したセルからなる構造が観察されることを示した。これらの構造は、圧延接合の際に両材料の界面近傍が強いせん断加工を受けた痕跡と考えられ、微細なセル構造を持つ領域と、伸長したセルからなる構造との境界部で、16Cr ステンレスが内部破壊して、表層部分のみが薄片状の付着物としてアルミニウム側に残存したと考えられる。また Fig. 4-5 b) で薄片状ステンレスの左側に矢印で示す部位では、アルミニウムが深くえぐれた様子が観察されることから、この部位はアルミニウムの母材内部で破壊していると考えられる。

Figure 4-6 には、薄片状ステンレスとアルミニウム母材との界面について、さらに高倍率で FE-TEM 観察した明視野像を示す。ここで見られる界面には、第 3 章において圧延接合の後に 400 °C、300 s の熱処理を行なったクラッド板のピール試験前の接合界面で観察された層と同様の約 20 nm の厚さを持つ中間層が観察された。また、その内部には、主に Al アモルファス酸化物からなる厚さ 20 nm の均一な層 (Fig. 4-6 b) 黒矢印) と、その内部に島状に分離した $\alpha\text{-Fe}$ (Fig. 4-6 b) 白矢印) が観察される。すなわち薄片状ステンレスとアルミニウムとの接合界面は、ピール試験による変形や破壊の影響を受けずに保持されていることが分かる。以上の結果から、Fig. 4-3 のアルミニウム側のはく離面で観察された Fe および Cr を含む付着

物の面積率を測定することによって，全面積の破壊形態に占める 16Cr ステンレス母材破壊の面積率を直接的に測定できることが分かる．

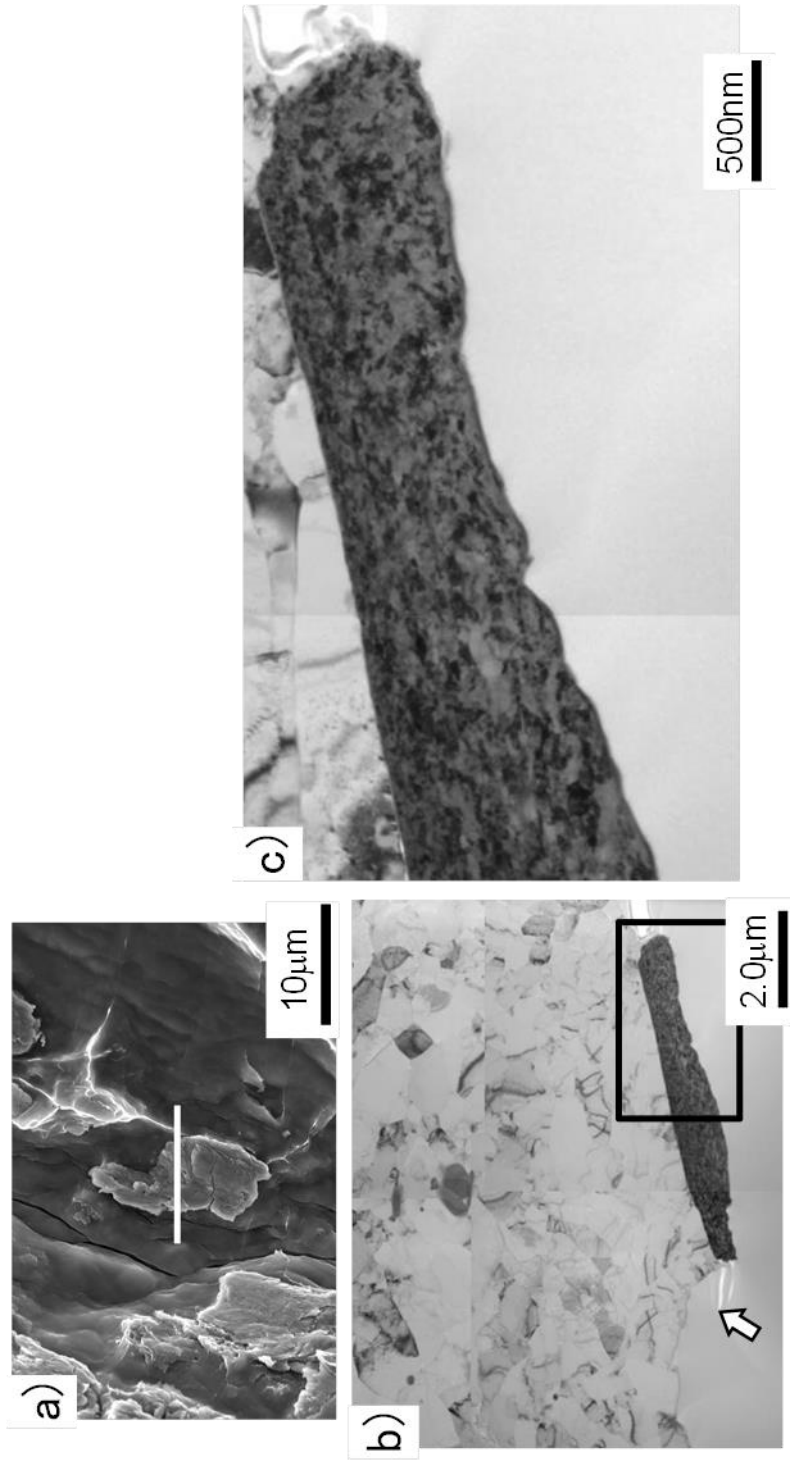


Fig. 4-5 SEM and cross-sectional TEM observation of the fracture surface of aluminum with flake-like deposits of 16Cr-stainless steel. a) SEM image of the fracture surface from the aluminum side, b) ,c) cross-sectional TEM images. Arrows indicate breakage of the aluminum base material.

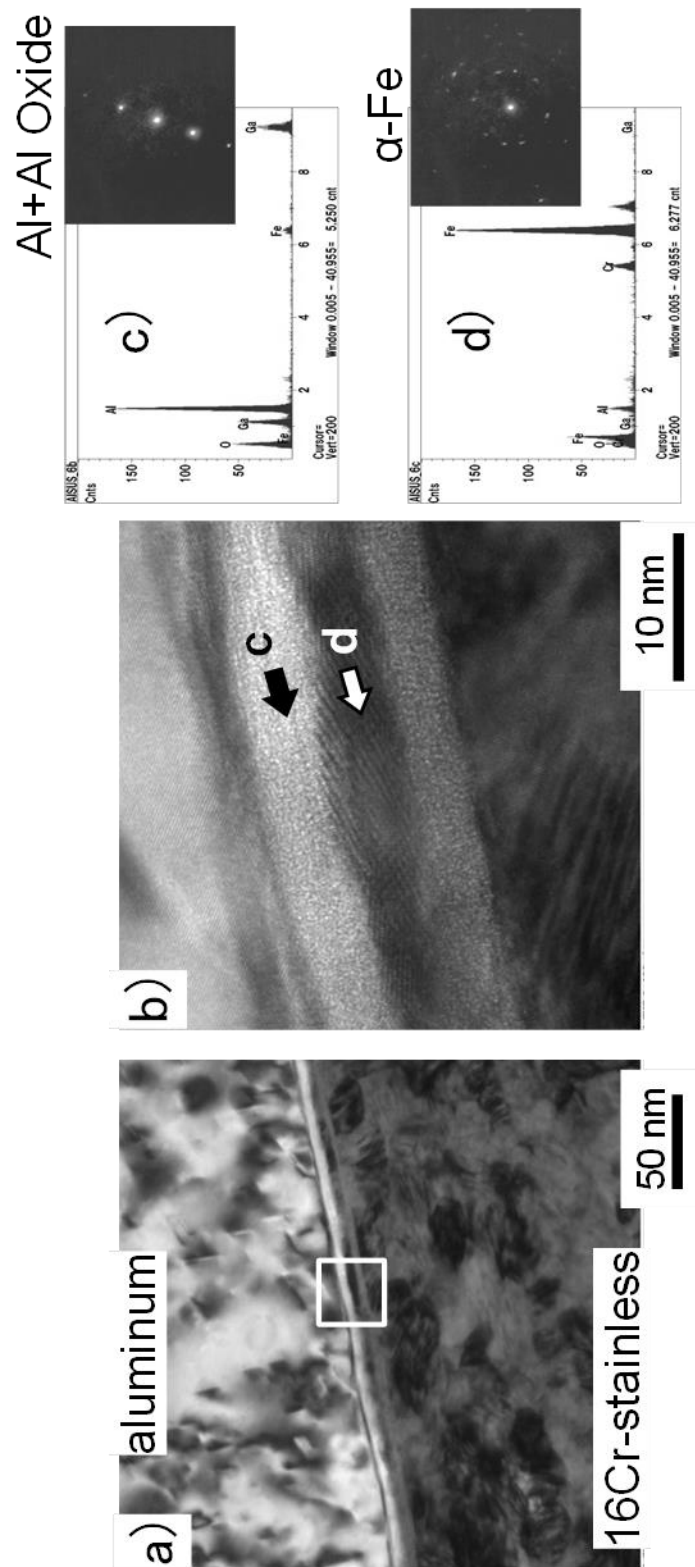


Fig. 4-6 TEM observation of the interface area between flake-like 16Cr-stainless steel and aluminum.

b) magnified image of a). c), d) m-EDS spectra from c) and d), respectively.

4.4 考察

4.4.1 熱処理に伴う界面破壊挙動の変化について

これまでの結果から、Fig. 4-2 の 16Cr ステンレス側はく離面におけるアルミニウム付着の面積率はアルミニウムの母材破壊面積率に相当し、Fig. 4-3 のアルミニウム側はく離面における Fe および Cr を含む付着物の面積率は、16Cr ステンレスの母材破壊面積率に相当することが分かった。また、はく離面の全面積において、これらどちらにも該当しない部分の面積率は、アルミニウムと 16Cr ステンレスの界面、つまり中間層から破壊が生じたと考えられる。

圧延接合まま材、および 300 °C と 400 °C での熱処理材の剥離破面観察結果 (Fig. 4-3 および 4-4) に基づき、上記した 3 種類の破壊形態の面積率を整理した。その結果を Fig. 4-7 に示す。圧延接合したままのクラッド板をピール試験した際の界面破壊は、その 59 % に相当する面積が、中間層で破壊していると考えられる。一方、同じクラッド板に 300 °C 以上の温度で熱処理を施すと、その界面の破壊形態はアルミニウムの母材破壊が 55% と支配的となり、16Cr ステンレスの母材破壊、ならびに中間層破壊の面積率がともに減少する。熱処理温度を 300 °C から 400 °C に上昇させても破壊形態に大きな差異は生じないが、アルミニウム母材破壊が 62% とさらに増大し、これに応じて中間層破壊が減少する。

これら界面破壊の起点となる、アルミニウム母材、16Cr ステンレス母材、中間層のそれぞれについて、その破壊強度におよぼす熱処理の影響を以下に考察する。

Figure 4-8 には、種々の条件で熱処理を施したクラッド板の圧延方向と平行な断面において、接合界面から 30 μm 位置と 500 μm 位置におけるアルミニウム層のビッカース硬さを測定した結果を示す。アルミニウムの母材破壊は接合界面の近傍で生じるが、接合界面近傍 (30 μm 位置) においては板厚中心部と比較して圧延ままから熱処理温度 200 °C までのビッカース硬さが高い。また、熱処理による再結晶挙動も板厚中心部とは異なり、より低温で軟化が生じる。そのためアルミニウム母材の破壊強度を考察するにあたっては、接合界面から 30 μm の位置で評価することが

必要である。すなわち、アルミニウム層は 300 °C 以上の熱処理によって著しく軟化し、特に接合界面近傍位置 (30 μm) においては 300 °C においても十分な軟化が進行していることが分かる。おそらく接合界面近傍のアルミニウム層は著しいせん断変形をうけるため、圧延接合したままの状態では加工硬化量が大きく硬さが高く、接合界面から 500 μm 位置のアルミニウムより低温で軟化したことが示唆される。また Fig. 4-9 には、A1100 アルミニウムに対してあらかじめ 30% の圧延加工を行ない、その後に 200 から 400 °C の温度で 1800 s 保持する熱処理を施した材料の常温における真応力-真ひずみ曲線を示す。アルミニウムが軟化すると、破壊強度が低下すると同時に延性が増す。また熱処理温度が 300 °C を超え 350 °C になると、より低い応力で塑性変形が開始することが分かる。クラッド接合した界面近傍のアルミニウム層の軟化温度がこの上記した温度より若干低温側にずれているのは、クラッド圧延では界面のアルミニウムに大きなせん断変形が加わることが理由と推察される。

16Cr ステンレスについてはデータを示さないが、300 から 500 °C の熱処理によって強度変化は無く、微細構造にも変化が認められない。すなわち圧延接合ままと熱処理後において破壊強度に差はないと考えられる。

中間層は、第 3 章で述べたように、300 から 500 °C の温度範囲においては熱処理の前後で厚さが変化しないが構造変化が認められた。すなわち、圧延接合したままのクラッド板では中間層の内部構造は、様々な酸化物の混合した不均一に波打つ複数の層からなる。これに対して、300 から 500 °C で熱処理を施した後では、主に Al アモルファス酸化物からなる均一な層へと再構成される。つまり中間層の内部が均一性の高い構造へと変化することによって、破壊強度が増したと推測した。

以上の考察から、圧延接合したままのクラッド板に対して、熱処理後のクラッド板では、中間層の破壊強度は増すことが予想される。一方では、16Cr ステンレス母材では破壊強度に変化が無く、アルミニウム母材についてはむしろ、破壊強度の低下が予想される。したがって、熱処理温度の上昇に伴い相対的に破壊強度が低いアルミニウム母材で延性破壊する割合が増加することは予想通りである。しかし、アルミニウムの破壊強度が界面から 30 μm においては 200 °C を超えると低下し始め

温度とともに著しく低下するにもかかわらず，実測されたピール強度は，圧延接合したままに比べて 300 °C 熱処理材において増大し，さらに 450 から 500 °C の温度で極大値を示した．この実験事実，直ぐには理解できず，ピール強度について別の機構を考える必要があることを示唆する．次節では，この点について考察を加える．

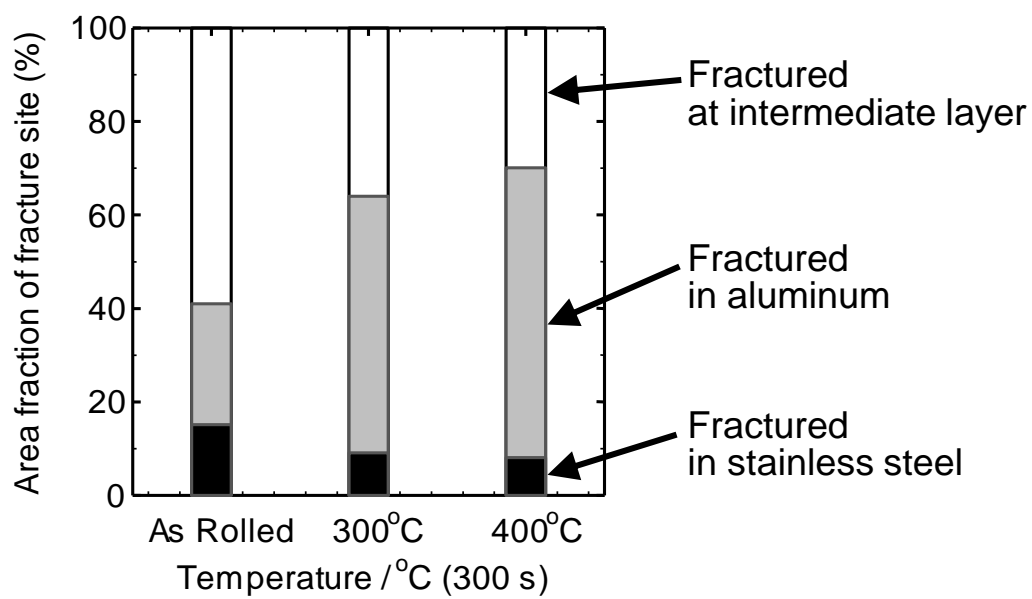


Fig. 4-7 Estimated area fraction in terms of fracture site category by the peel test as a function of annealing temperature.

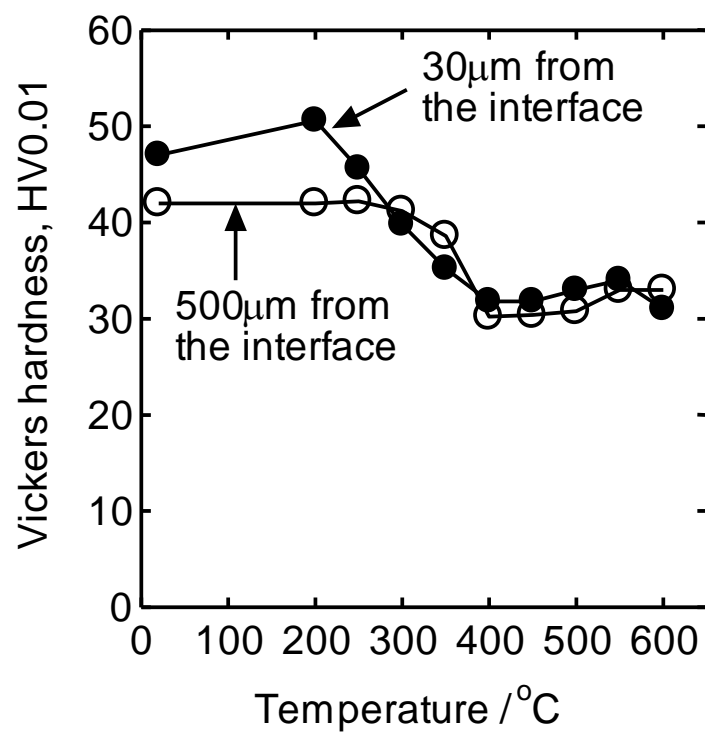


Fig. 4-8 Change in Vickers hardness of the aluminum layer at 30 μm and 500 μm from the interface of the clad sheet as a function of annealing temperature.

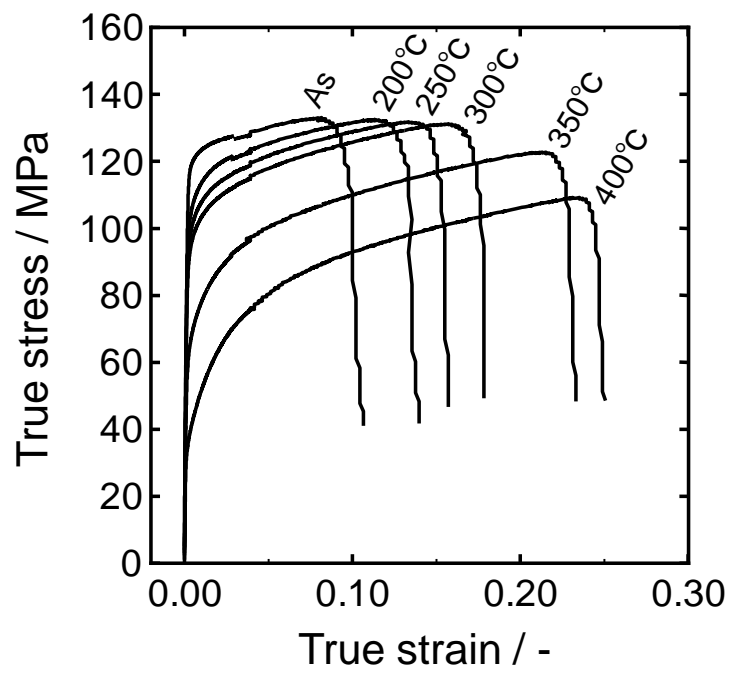


Fig. 4-9 Room temperature stress-strain curves of A1100 aluminum cold rolled by 30% followed by heat treatment at 200 - 400 °C.

4.4.2 熱処理に伴うピール強度の向上とその強度発現機構について

クラッド板の接合界面の本来の接合強度は、単位面積当たりの破壊強度として評価されるべきものである。しかし、厚さの薄いクラッド板では、垂直引っ張りやせん断破壊などの試験方法を採用することができないため、ピール試験が実質的に唯一の接合強度評価手段となっている。ピール試験から得られるピール強度は、前述したように、短冊状試験片の一端を機械的にはく離して T 字型試験片とした後に、分離した両材料のそれぞれを引っ張り試験機のつかみ具にチャッキングして引き剥がした際のクロスヘッド荷重を試験片の幅で除した値として定義された値である。すなわちピール試験によって評価された接合強度は、その開口先端部の形状や、引き剥がし力により塑性変形した領域の大きさによって影響を受けることが予想される。

Figure 4-10 は、圧延接合したままのクラッド板と 300 °C で 1800 s の熱処理を施したクラッド板とについて、ピール試験を行ない、その際のはく離変形が定常に至ったところで試験を途中止めし、開口先端部から断面研磨サンプルを作製して観察した写真である。Fig. 4-10 a), b) の光学顕微鏡写真からは、圧延接合まま材よりも熱処理材において開口幅が大きい特徴が認められる。これは熱処理によるピール強度の増大によって、母材変形量が大きくなったことに対応している。また、アルミニウム側におけるはく離面の断面形状に注目すると、はく離面には凹凸が存在し、熱処理後のサンプルではその粗さが大きくなっている様子が認められる。これは Fig. 4-4 で見たように、はく離面に存在するアルミニウムのディンプル高さが熱処理によって高くなったことに相当し、アルミニウムが伸びを伴って塑性変形していることを示している。Fig. 4-10 c), d) には、開口先端部を SEM で拡大観察した写真を示す。写真中の界面近傍で部分的に白く観察されるのは、16Cr ステンレスが母材破壊した結果としてアルミニウム側に残留した薄片状のステンレスである。圧延接合まま材の開口先端部においては、薄片の隣接位置から開口側では連続して界面破壊している。一方、熱処理材においては、薄片と隣接する開口側でも部分的に接合

が保たれており、界面破壊が断続的に生じている様子が観察される。すなわち、熱処理材のピール試験における開口先端部での破壊挙動は次のように推定される。

先ず、界面破壊の起点としては、接合が不十分な中間層での破壊や、16Cr ステンレスの脆性的な母材破壊が考えられるが、本研究に用いたクラッド板においては、熱処理の有無にかかわらず、Fig. 4-10 c), d)で観察されたように、主に 16Cr ステンレスの母材破壊が界面破壊の起点になっていると考えられる。このような破壊起点は、圧延接合の際に 16Cr ステンレスの表面近傍で生じた変形履歴に依存すると考える。例えば、接合前の 16Cr ステンレス母材の表面に存在した凹凸が接合圧延過程で倒れ込み、その部位が完全に一体化することなく破壊起点となるケースが想定される。また 16Cr ステンレスの組織形態ならびに破壊強度は、300 から 500 °C の熱処理温度範囲では変化しないため、破壊起点の存在頻度は、熱処理の前後で同一と考えられる。このような 16Cr ステンレスの母材破壊が生じると、接合界面のアルミニウム側には組成として Fe や Cr を含む薄片状の付着物が残留する。16Cr ステンレス母材から薄片が剥がされて空隙が生じると、その隣接位置では、アルミニウムの母材破壊もしくは中間層の破壊が誘起されることが考えられる。圧延接合したままのクラッド板では Fig. 4-7 に示した解析から明らかなように、中間層破壊が支配的に生じる。中間層は厚さが約 20nm と薄いため、破壊に伴う伸び変形を生じることが無く、そのため薄片の隣接位置から開口側では連続した界面破壊が観察されることになり、Fig.4-11 a)で模式的に示すように、ピール試験の際の引き剥がし力によって塑性変形する領域が比較的狭くなる。一方で、300 から 500 °C で熱処理されたクラッド板においては、Fig. 4-11 b)の模式図に示すような機構で界面破壊が進行し、引き剥がし力によって塑性変形したアルミニウムの領域の増大に伴ってピール強度が増大したと考えた。以上のように、熱処理されたクラッド板の接合界面では、中間層の内部が均一性の高い構造に再構成されることによって破壊強度が増大する一方で、アルミニウムが軟化することによって、より低い応力で伸びを伴って塑性変形するようになる。そのため 16Cr ステンレスの母材破壊を起点として薄片が剥がされて空隙が生じると、その隣接位置ではアルミニウムの塑性変形が支配的に生じる。熱処理を受けたアルミニウムは破壊強度が低下しているが、界面破壊を

生じるまで伸びを伴って変形する結果、断続的な界面破壊が生じると推察される。界面破壊が断続的となると、ピール試験の引き剥がし力によって塑性変形する領域が広がるため、単位幅あたりで評価したピール強度が増大すると予想される。このような離先端部分での塑性変形領域は、アルミニウムの延性増大に伴って広がるため、熱処理温度の上昇に伴ってアルミニウムの破壊強度は低下するが単位幅あたりのピール強度は増大すると推察した。

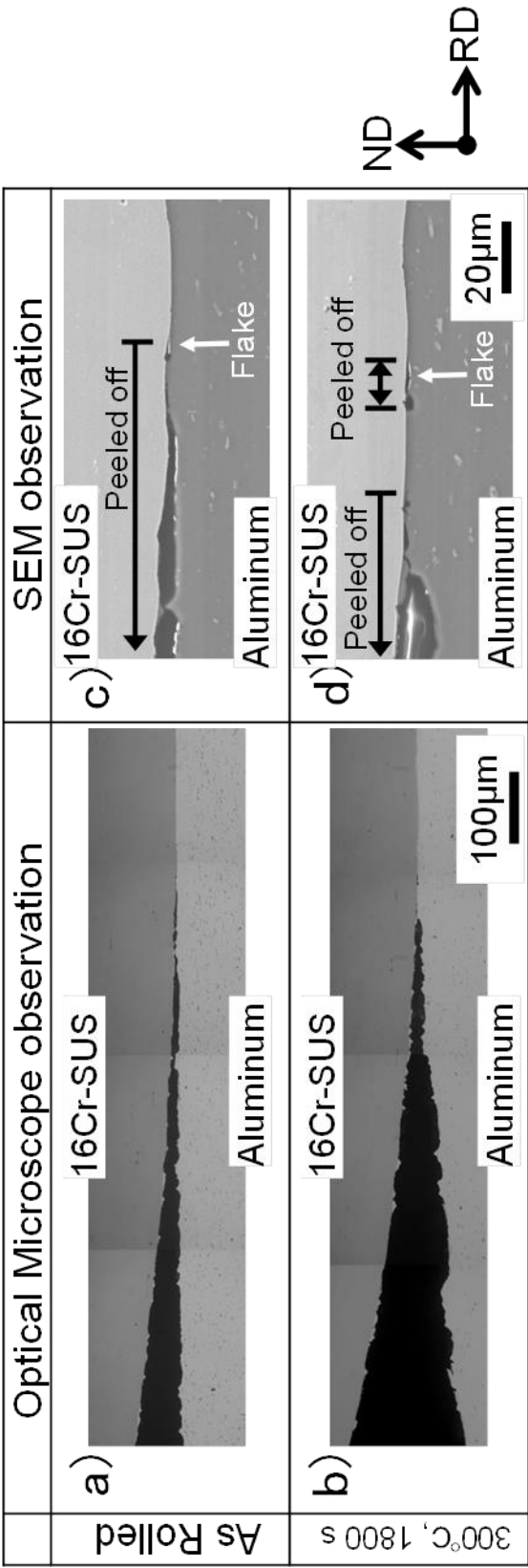


Fig. 4-10 a), b) Optical and c), d) SEM observations of the crack tip during the peel test of as-rolled clad material and subsequently annealed material.

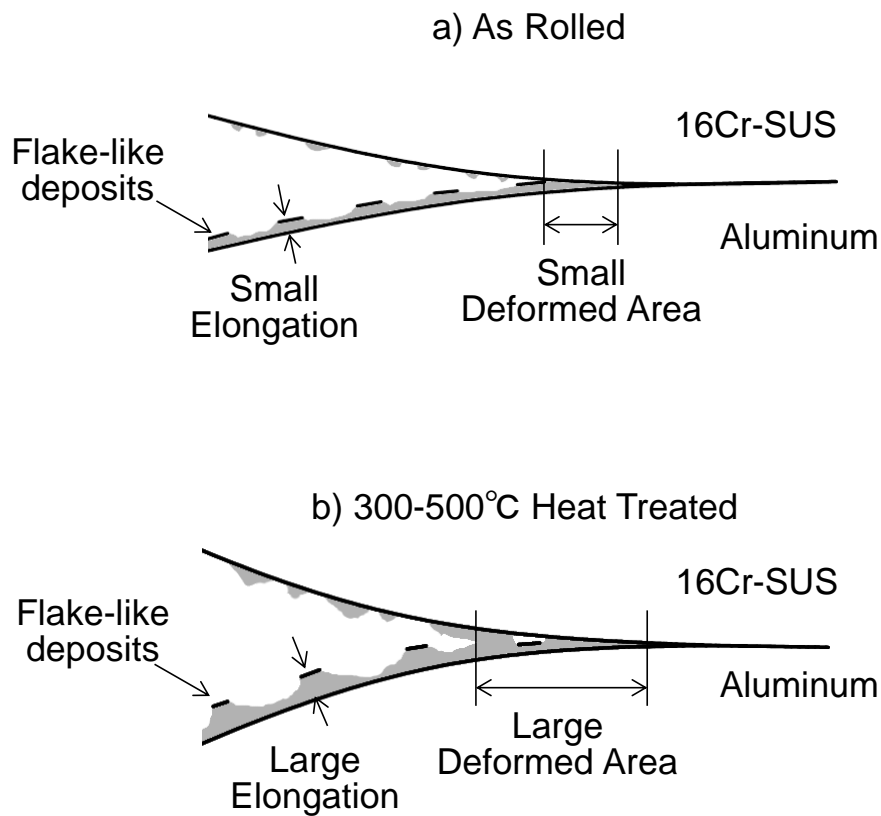


Fig. 4-11 Schematic illustration showing the postulated mechanism for the increase in peel strength by annealing. a) as-rolled clad material, b) annealed material at 300 - 500°C.

4.5 結言

圧延法で接合した 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの二層クラッド板を 300 から 500 °C で熱処理した場合にピール強度が増大する現象について、その原因をピール試験後の破壊面に注目して解析し、次の結論を得た。

- 1) ピール試験後のステンレス側の破壊面には、網目状に金属アルミニウムの付着が見られ、その付着面積率は熱処理温度の上昇に伴って増大した。一方のアルミニウム側の破壊面には、ディンプル状の網目構造が見られるとともに、その底部には厚さが約 1 μm の 16Cr ステンレスからなる薄片状の付着物が認められた。
- 2) ピール試験後の破壊面観察から、その破壊形態におよぼす熱処理の影響を解析した結果、圧延接合したままのクラッド板では中間層破壊が支配的に起こること、また熱処理したクラッド板ではアルミニウム母材破壊が支配的に起こることを明らかとした。
- 3) アルミニウム母材の破壊強度が熱処理温度の上昇とともに低下するにもかかわらず、実測されたピール強度は、300 から 500 °C の熱処理によって増大することから、ピール強度発現機構をアルミニウム母材の破壊強度から理解することはできない。
- 4) ピール試験を途中止めしたサンプルの開口先端部における変形状態の観察から、熱処理したクラッド板ではアルミニウム母材が軟化するため、より低い応力で伸びを伴って塑性変形するようになる。その結果、ピール試験の引き剥がし力によりアルミニウムが塑性変形する領域が増大して、単位幅あたりで評価したピール強度が増大すると推察された。

4 章の参考文献

- 1) T.Okui and K.Ushioda: Tetsu-to-Hagane, 105 (2019), 38.
- 2) S.Mukae and K.Nishio and M.Katoh and T.Inoue and N. Hatanaka: Q. J. Jpn. Weld. Soc., 9(1991), 17.
- 3) H.R.Akramifard and H.Mirzadeh and M.H.Parsa: Mater. Sci. Eng. A, 613(2014), 232.
- 4) T.Kawano and M.Matui and K.Nishio and M.Katoh and M. Hirata: Q. J. Jpn. Weld. Soc., 22-2(2004), 291.
- 5) T.Kawano and M.Matui and K.Nishio and M.Katoh and M.Hirata: Q. J. Jpn. Weld. Soc., 22-2(2004), 300.
- 6) H.Oikawa and T.Saitoh and T.Yoshimura and T.Nagase: Tetsu-to-Hagane, 83 (1997), 629.
- 7) H.Oikawa and T.Saitoh and T.Nagase and T.Kiriyama: Tetsu-to-Hagane, 83 (1997), 641.
- 8) T.Okui and K.Ushioda: Tetsu-to-Hagane, 105 (2019),
DOI: 10.2355/tetsutohagane.TETSU-2018-133
- 9) JIS K 6854-3: Adhesives - Determination of peel strength of bonded assemblies - Part 3 : Adhesives-180° peel test for flexible-to-flexible bonded assemblies (T-peel test) , Japanese Industrial Standards, (1999)

第 5 章 クラッド板の接合強度の評価方法について

5.1 緒言

前章までに、温間圧延法で接合したステンレス鋼とアルミニウムとのクラッド板を対象として、効率的な圧延接合の条件ならびに、その接合機構について検討してきた。その際、クラッド板の接合強度は、JIS K6854-3 (接着剤－はく離接着強さ試験方法－第 3 部：T 型はく離)¹⁾に類似したピール試験を行ない、単位幅あたりのピール強度を測定することによって評価している。クラッド材料の接合界面における単位面積あたりの接合強度を評価する方法としては、接合面と平行にせん断荷重を加えてせん断破壊荷重を測定する方法²⁾のほか、接合面を法線方向に引っ張って、引張試験、破壊靱性試験や疲労き裂伝播試験から評価する試み³⁾などがある。しかしながら個々の構成材料の肉厚が薄いクラッド板では、接合部位の破壊強度に比べて母材の破断強度が小さいことが多いため、垂直引っ張りやせん断破壊などの試験方法では接合部位が破壊するより先に、母材破断が生じてしまい、接合強度を測定することができない。そのため薄肉のクラッド板では、ピール試験が実質的に唯一の接合強度評価手段となる。

ピール試験から求まるピール強度は 4.2 節および Fig. 4-1 で示したように、短冊状試験片の一端を機械的にはく離して T 字型試験片とした後に、分離した両材料のそれぞれを引張試験機のつかみ具にチャッキングして引き剥がした際のクロスヘッド荷重を、試験片の幅で除した値として定義される値である。この試験方法は、薄肉のクラッド板を実使用する際に見られる典型的な破壊形態の一つをよく再現しており、また試験結果として定量値を得ることができる点で、実用的に優れた試験方法である。一方で、クラッド板の接合界面の本来の接合強度は、単位面積当たりの破壊強度として評価されるべきものであるが、4.4.2 項で示したように、ピール試験によって評価された接合強度は、その開口先端部の形状や、引き剥がし力による塑性変形領域の大きさによって影響を受けるために、接合面の単位面積当たりの接合強度を正確に評価することができない本質的な欠点がある。

本章では，薄板の金属クラッド板の接合強度を把握し評価するための手法について述べるとともに，第4章で推定したピール試験の開口部先端におけるアルミニウムの塑性変形領域の拡がりによるピール強度の増大について，検証試験を行なった．

5.2 クラッド薄板を対象とした接合強度評価方法

金属クラッド材料の接合強度評価方法として，例えば JIS G 0601(2012)クラッド鋼の試験方法⁴⁾には，せん断強さ試験，および超音波探傷試験が記載されている．しかしながら本規格は，全厚が 8 mm 以上のクラッド鋼を対象とした試験方法であり，特にせん断強さ試験では，薄肉のクラッド板からの試験片加工の困難さに加えて，界面の接合強度と比較して母材強度が小さいことから，板厚が数 mm 以下のクラッド薄板の評価には適さない．

一方で，接着剤の分野では，種々の破壊形態を対象とした接着強さ試験方法が規格化されており，代表的な試験方法として，せん断強さを測定するもの^{5)・9)}，引張強さを測定するもの¹⁰⁾，はく離強さを測定するもの^{1)・11)・13)}，曲げ試験により接着強さを評価するもの¹⁴⁾，に大別される．

せん断強さを直接測定する試験方法としては，JIS K 6850:1999 剛性被着材の引張せん断接着強さ試験方法⁵⁾，JIS K 6852:1994 接着剤の圧縮せん断接着強さ試験方法⁶⁾，JIS K 6851:1994 接着剤の木材引張りせん断接着強さ試験方法⁷⁾，JIS K 6868-1:1999 突合せ接合中空円筒ねじり試験方法⁸⁾，JIS K 6868-2:1999 厚肉被着材を用いた引張試験方法⁹⁾，が挙げられる．これらのうち，JIS K 6850:1999 剛性被着材の引張せん断接着強さ試験方法は，これに類似した試験方法を用いることによって金属クラッド板の接合強度を評価できる可能性があり，その模式図を Fig. 5-1 a)に示す．しかしながら先にも述べたとおり，特に薄肉のクラッド板に対してこのようなせん断強さを評価する場合には，接合部位の破壊強度に比べて母材の破断強度が小さいことが多いため，接合部位が破壊するより先に，母材破断が生じてしまい，接合強度を測定できないことが多い．

引張強さを測定するものとしては，先に述べた大路らによる解析⁵⁾のほか，JIS K

6849:1994 接着剤の引張り接着強さ試験方法¹⁰⁾が挙げられる。しかし、特に薄肉のクラッド板に対しては、つかみ部を有する試験片の作成が極めて困難なため、実質的に適用することができない。

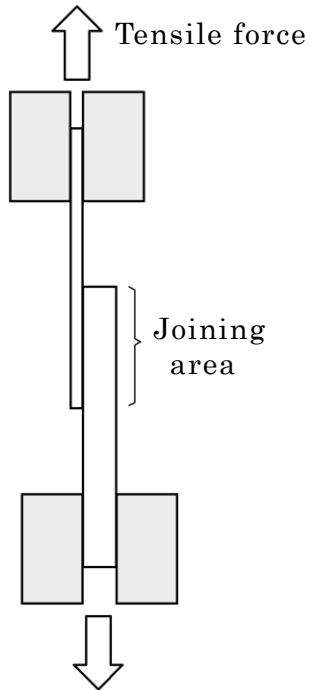
はく離強さを測定するものとしては、JIS K 6854:1999 接着剤-はく離接着強さ試験方法^{1),11)・13)}に規定がある。この手法は、被接着材のうち少なくとも一方が、たわみ変形することを前提としており、その試験形態ごとに JIS K 6854-1:1999 の 90 度はく離¹¹⁾、JIS K 6854-2:1999 の 180 度はく離¹²⁾、JIS K 6854-3:1999 の T 形はく離¹⁾、JIS K 6854-4:1999 の浮動ローラ法¹³⁾が規定されている。これらのうち、構成材料の全てが延性を有する金属クラッド板を対象とする場合には、その実使用における破壊形態を再現する評価手法として JIS K 6854-3:1999 の T 形はく離が最も適した手法と考えられ、本研究においてもこれに類似した手法で接合強度を評価した。T 型はく離試験の模式図を Fig. 5-1 b)に示す。同図は 2 層クラッド板を対象とした模式図を示しているが、3 層以上のクラッド板であっても評価対象とする接合界面を境界として 2 分した T 型試験片を作成することにより、はく離強さを測定することができる。また 2 分された双方の厚さや材料強度が大きく異なる場合には、はく離していない素材部分の引っ張り軸に対する角度が安定しない場合が想定される。そのような場合には、上記の JIS K 6854-4:1999 浮動ローラ法に類似した測定方法を採用することも可能である。

しかしながら、特に厚さが 1 mm を下回るような極薄のクラッド板を対象とする場合には、上記のはく離試験が適用できないことが多い。その理由は、T 型試験片を作成するために端部を機械的に強制はく離する加工が難しいことや、はく離試験において、母材の肉厚が極めて薄いために、母材破断を生じてしまい、はく離強度が得られないことが原因である。このような場合には、曲げ試験による接合強度評価が唯一の試験方法となる。接着剤分野において曲げ試験による接合強度評価方法としては、JIS K 6856:1994 接着剤の曲げ接着強さ試験方法¹⁴⁾が挙げられる。しかしながら、構成材料が延性を有する金属クラッド板であって、一定以上の接合強度を有する場合には、180 度の曲げを与えた場合でも、はく離が生じず、接合強度を測定することができない場合が多い。そのような場合には、複数回の曲げ変形を加

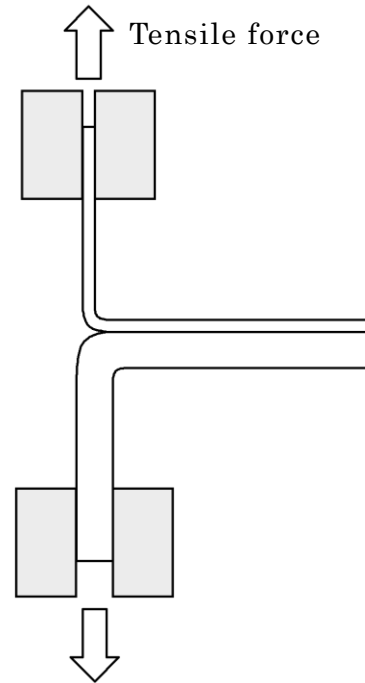
えることによって接合強度を評価することが必要となる．一回の曲げ変形による接合強度評価の場合には，曲げモーメントによる各層間のせん断力を算出することによって定量値での評価が可能である．しかし，複数回の曲げ変形を加える場合には，上記の様なせん断力による評価ができないため，曲げ回数によって定量評価することになる．繰り返し曲げ試験の例として，Fig. 5-1 c)には，90 度繰り返し曲げ試験の模式図を示す．本手法によれば，極薄クラッド板の接合強度を簡便に評価することができるが，評価される部位が曲げ頂点の一点のみに集中するため，代表値としての信頼性に劣る欠点がある．そこで，一定の長さ範囲を評価対象とする場合には，Fig. 5-1 d)に示すねじり試験方法を採用することができる．本手法では，界面破壊に至るまでのねじり回数もしくはねじり角度を以て定量評価が可能である．

以上に述べたように，薄肉のクラッド板を対象とした接合強度の評価は，試験材の形状や寸法の特徴から制約を受けるため，ピール試験や繰り返し曲げ試験など特定の手法による評価が必要になる．また，このような評価方法には，学術的に重要な単位面積あたりの接合強度を算出することが極めて困難である点で課題がある．接合界面の接合強度もしくは健全性を評価する手法には，本節で述べた試験方法以外にも多くの手法^{15),16)}が提案されており，実際の製品の品質保証においては，その使用形態に応じた適切な試験方法を個々に検討することが望ましい．

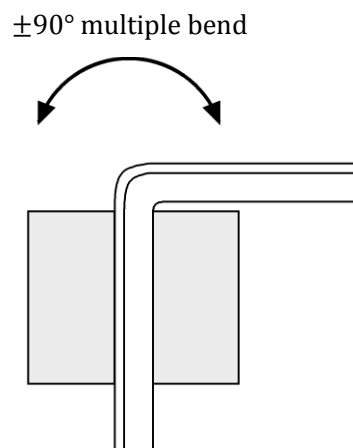
a) Lap-shear strength test



b) Peel strength test



c) Multiple bend test



d) Multiple torsion test

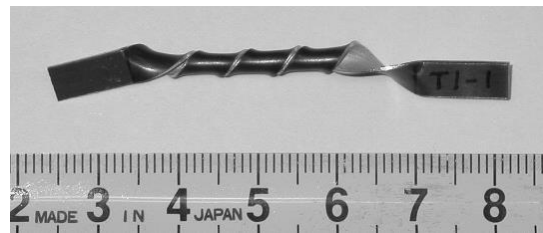


Fig. 5-1 Schematic examples showing bonding strength evaluation methods for thin clad sheet.

5.3 垂直引張試験による評価試験

第4章では、温間圧延法で接合した 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの二層クラッド板を 300 から 500 °C で熱処理した場合にピール強度が増大する現象について、ピール試験後の破壊面に注目して解析した。その結果、圧延接合したままのクラッド板では中間層破壊が支配的に起こり、熱処理したクラッド板ではアルミニウム母材破壊が支配的に起こることを明らかとした。しかしながら、アルミニウム母材の破壊強度が熱処理温度の上昇とともに低下するにもかかわらず、実測されたピール強度は、300 から 500 °C の熱処理によって増大することから、ピール強度発現機構をアルミニウム母材の破壊強度から理解することはできない。そこで、ピール試験を途中止めしたサンプルの開口先端部における変形状態を詳細に観察した結果、熱処理したクラッド板ではアルミニウム母材が軟化するため、より低い応力で伸びを伴って塑性変形するようになり、その結果、ピール試験の引き剥がし力によりアルミニウムの塑性変形領域が拡がり、単位幅あたりで評価したピール強度が増大すると推察した。

上記の推定によれば、同クラッド板の接合界面における真の接合強度、すなわち単位面積あたりの接合強度は、圧延接合ままに比べて、熱処理の後では少なくとも増大することは無く、むしろ低下する可能性も考えられる。前節で述べたとおり、薄肉クラッド板では単位面積あたりの接合強度を直接測定することは極めて困難である。ここでは、試験材の形状を工夫した検証実験により、接合界面の垂直引き剥がし応力の推定を試みた。

5.3.1 実験方法

試験に用いる接合材は，表裏面に用いる合わせ材としてSUS304 の厚さ 1.5 mm の焼鈍材，および中間層に用いる母材アルミニウムとしてA1100 の厚さ 4.0 mm の焼鈍材から成る 3 層のクラッド材とした．これらの素材板を重ね合わせて 350 °C の電気加熱炉で大気加熱した後に，ワークロール直径が 200 mm の 2 段圧延機で圧延し，出側板厚を合計で 4.3 mm (圧下率 38%) とした．この際の試験片形状をFig. 5-2 に示す．すなわち，垂直引き剥がし試験に用いるクラッド材料には，アルミニウムに厚さが 4.0 mm でφ15 mm のボタン形状の素材を用いることで，接合される面積を限定したボタン接合材とした．一方，はく離試験に供するクラッド板は，試験片形状に対して十分に大きな面積を持つ板形状で接合した．

このように接合したボタン接合材は，接合部の周辺に未接合のSUS304 を残した状態で切断し，Fig.5-3 に示すように，SUS304 部分を粘着テープで専用治具に固定し，引張試験機で垂直に引き剥がした際のクロスヘッド荷重を測定した．また引き剥がされたボタン接合材から，接合部分の面積を測定し，クロスヘッド荷重を接合面積で除することによって単位面積あたりの接合強度を算出した．

一方の板形状で接合したクラッド板は，前章までと同様に，JIS K6854-3 (接着剤－はく離接着強さ試験方法－第 3 部：T型はく離)に類似したピール試験を行ない，単位幅あたりのピール強度を測定した．

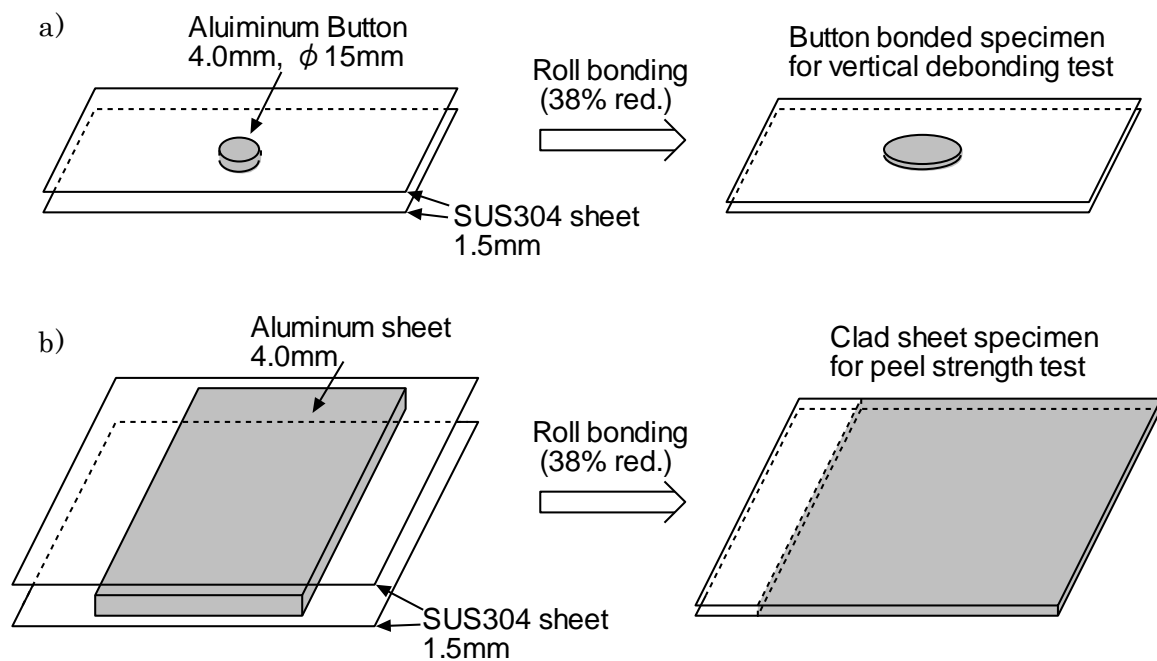


Fig. 5-2 Preparation procedure of the specimens for bonding strength evaluation.

a) Button roll-bonding for vertical tensile test, and b) sheet roll-bonding for peel strength test.

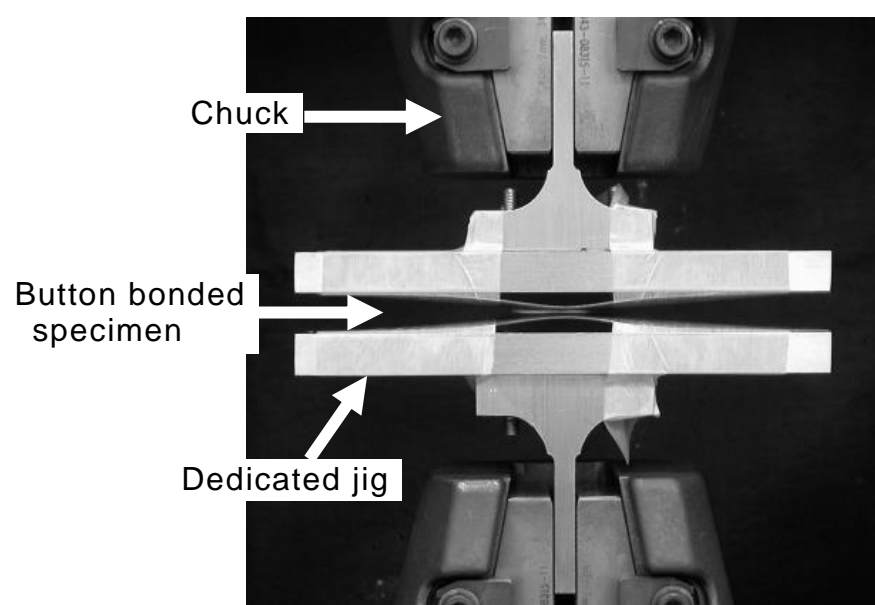


Fig. 5-3 Appearance of the equipment for vertical tensile test.

5.3.2 実験結果と考察

Figure 5-4 には，ボタン接合材を用いた垂直引き剥がし試験において，クロスヘッド移動量に対する測定荷重の変化を，接合圧延まま材と熱処理材とで比較した結果を示す．同図より，垂直引き剥がし荷重の推移は，熱処理の有無にかかわらずほぼ同等であることが分かる．

Figure 5-5 には，ボタン接合材を用いた垂直引き剥がし試験による単位面積当たりの接合強度と，板接合材を用いた単位幅あたりのピール強度とを，熱処理前後で比較した結果を示す．板接合材のピール試験では，接合まま材に比べ，接合後に 300 °C, 1800 s の熱処理を行なうことによって，ピール強度の増大が認められた．一方で，ボタン接合材の垂直引き剥がし試験による単位面積当たりの接合強度を比較すると，試験回数によるばらつきがあるものの，熱処理の後で少なくとも増大することが無く，むしろ若干の低下傾向が認められた．

以上の結果から，圧延法で接合したステンレス鋼とアルミニウムとの二層クラッド板を 300 から 500 °C で熱処理した場合のピール強度増大は，単位面積あたりの接合強度が増大するためでは無く，第 4 章で推定したように，アルミニウム母材の軟化に伴って，ピール試験の引き剥がし力による塑性変形領域が広がることによって，単位幅あたりのピール強度が増大する現象であることが確認された．

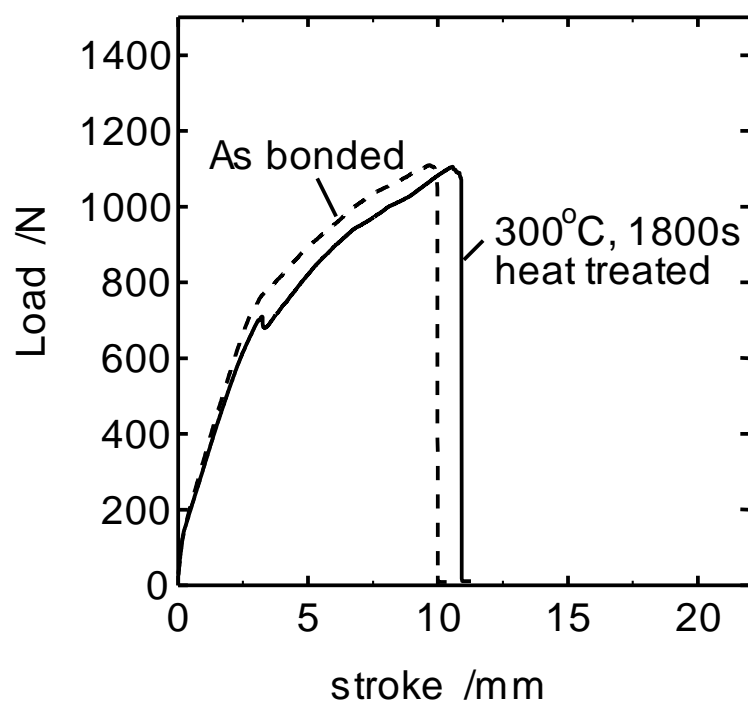


Fig. 5-4 Comparison of load-stroke curve by vertical tensile test of button roll-bonded specimens with and without heat treatment at 300 °C for 1800 s.

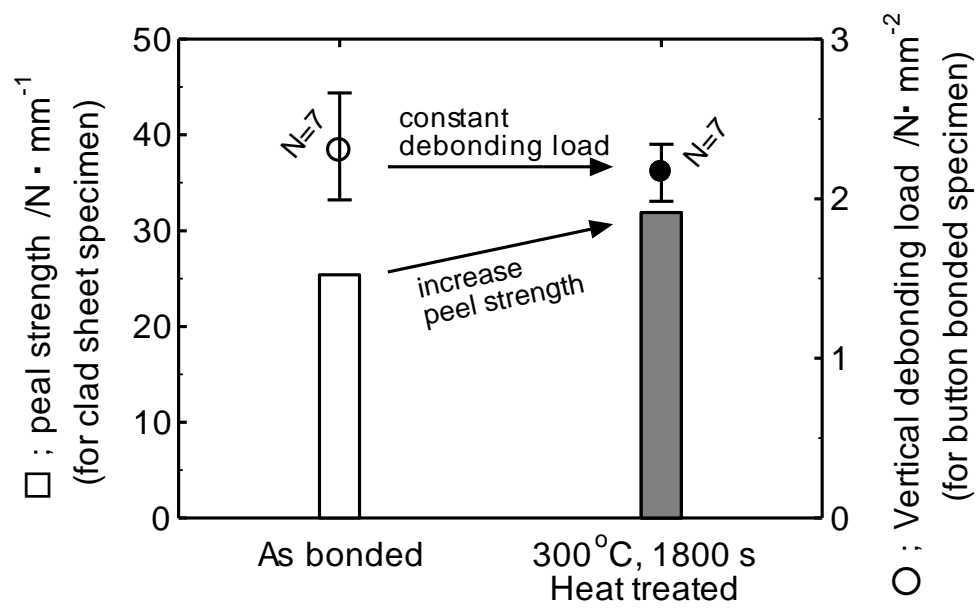


Fig. 5-5 Comparison of bonding strength evaluated by peel strength test of sheet roll-bonded specimen with that by vertical debonding test of button roll-bonded specimens with and without heat treatment at 300 °C for 1800 s.

5.4 結言

薄肉のクラッド板を対象として接合界面の接合強度を測定する場合には，その形状および寸法による制約から，適用可能な測定手法が限られる．厚さがおよそ 1 mm から数 mm の範囲ではピール試験が，さらに厚さが 1 mm を下回る極薄材では繰返し曲げ試験やねじり試験が，代表的な試験手法となる．これらの試験手法では，学術的に有益な，単位面積あたりの接合強度を定量評価することができないが，実際の製品の使用形態における破壊挙動を再現する試験として，品質保証のうえで有益な試験手法と言える．

また，4 章で推定されたように，圧延法で接合したステンレス鋼とアルミニウムとのクラッド板について，接合後に熱処理を行うとピール強度が増大する現象には，ピール試験の破壊形態が持つ特徴が強く影響していると考えられる．この検証試験として，ステンレス鋼とアルミニウムとのボタン接合材を試作して，接合界面に垂直な引き剥がし応力を測定し，同様に試作したクラッド板のピール強度と比較検討した．その結果，ピール強度と異なり，ボタン圧延接合材を用いた接合界面における真の接合強度，すなわち単位面積あたりの接合強度は，圧延接合まま材に比べて，熱処理の後でもほとんど変化せず，むしろ低下する傾向が見られた．本結果から，第 4 章で推定したピール強度発現機構，すなわち，熱処理したクラッド板ではアルミニウム母材が軟化し，より低い応力で伸びを伴って塑性変形するようになるために，ピール試験の引き剥がし力により塑性変形領域が拡がり，単位幅あたりで評価したピール強度が増大するとした推定機構が妥当であることを，実験から確認した．

5 章の参考文献

- 1) JIS K 6854-3: Adhesives - Determination of peel strength of bonded assemblies - Part 3 : Adhesives-180° peel test for flexible-to-flexible bonded assemblies (T-peel test) , Japanese Industrial Standards, (1999).
- 2) T.Fukuda and T.Iwadate: Tetsu-to-Hagane, 76(1990), 1293.
- 3) K.Ohji and Y.Nakai and S.Hashimoto: J. Soc. Mater. Sci., Jpn., 39(1990), 375.
- 4) JIS G 0601: Testing methods for clad steels, Japanese Industrial Standards, (2012).
- 5) JIS K 6850: Adhesives - Determination of tensile lap-shear strength of rigid-to-rigid bonded assemblies, Japanese Industrial Standards, (1999).
- 6) JIS K 6852: Testing methods for shear strength of adhesive bonds by compression loading, Japanese Industrial Standards, (1994).
- 7) JIS K 6851: Testing methods for tensile shear strength of wood-to-wood adhesive bonds, Japanese Industrial Standards, (1994).
- 8) JIS K 6868-1: Adhesives - Determination of shear behaviour of structural bonds - Part 1 : Torsion test method using butt-bonded hollow cylinders, Japanese Industrial Standards, (1999).
- 9) JIS K 6868-2: Adhesives - Determination of shear behaviour of structural bonds - Part 2 : Thick-adherent tensile-test method, Japanese Industrial Standards, (1999).
- 10) JIS K 6849: Testing methods for tensile strength of adhesive bonds , Japanese Industrial Standards, (1994).
- 11) JIS K 6854-1: Adhesives - Determination of peel strength of bonded assemblies - Part 1 : 90° peel, Japanese Industrial Standards, (1999).
- 12) JIS K 6854-2: Adhesives - Determination of peel strength of bonded assemblies - Part 2 : 180° peel, Japanese Industrial Standards, (1999).
- 13) JIS K 6854-4: Adhesives - Determination of peel strength of bonded

- assemblies - Part 4 : Floating-roller method, Japanese Industrial Standards, (1999).
- 14)JIS K 6856: Testing methods for flexural strength of adhesive bonds , Japanese Industrial Standards, (1994).
- 15)界面強度評価ハンドブック, 日本材料学会, 京都, (2011).
- 16)池田千里: 天田金属加工機械技術振興財団研究概要報告書, 16(2004), 155.

第 6 章 総括

6.1 本研究で得られた結論

温間圧延接合法を利用して、ステンレス鋼とアルミニウムとの金属クラッド板を、広幅コイルとして量産する技術が確立されている。このようなクラッド板は、電磁調理器用の器物や IH 炊飯器の内釜として利用が拡大し定着している。本研究ではこれら以外への用途拡大に向けて、母材アルミニウムと組み合わせる合わせ材に Fe-Ni-Cr 合金や焼き入れステンレス鋼を配置した金属クラッド板を開発し、従来の金属材料には無い新たな高機能材料を実現した。また本研究では、このような金属クラッド板の製造にあたって、より効率的に高い接合強度を得るための接合条件について検討した。さらに、16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの二層クラッド板を対象として、その接合界面の構造を詳細に解析することによって、クラッド板の接合界面における異種金属接合を担う接合機構を明らかとするとともに、熱処理による接合強度の変化の原因としてピール強度の発現機構を推定し、検証実験によって確認した。

各章で得られた結論は次のとおりである。

第 1 章では、本研究が対象とする金属クラッド板の特徴を、その利用によって得られる機能と用途の観点から紹介した。また、合わせ材に Fe-Ni-Cr 合金を配した調理器用感温磁性材料クラッド板、ならびに合わせ材に SUS403 焼き入れステンレス鋼を配したディスクブレーキ用クラッド板の開発事例について述べた。またこれらのクラッド板を製造する実機温間圧延設備の特徴について述べた。そのうえで、金属クラッド板の接合機構に関する従来の研究と課題について整理し、本研究の目的ならびに本論文の構成について記述した。

第 2 章では、温間圧延法によるクラッド板の接合にあたって、高い接合強度を効率的に得るための圧延条件として、主に圧延中の異種金属間における摩擦エネルギーに注目した解析と考察を行った。実機生産ラインの操業解析に適した評価パラメ

ータとしては、圧延ギャップ内での異種金属界面の相対すべり距離を算出する簡便なモデルを構築し、本モデルから導かれる相対すべり量 ΔL 、摩擦量評価指数 $F(=\Delta L \cdot P_m)$ を用いた操業解析の有用性について提案した。また、有限要素法を用いた圧延シミュレーションから、ワークロールと材料間の摩擦係数を増大させることによって接合強度が向上することが予想された。そこで、小型圧延機を用いて潤滑条件を変化させた検証試験を行ない、予想どおりの効果が得られることを確認した。

第3章では、圧延法で接合された 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとのクラッド板について、接合界面の微細構造を調査し、圧延接合したままの接合界面には厚さ約 20 nm の中間層が存在し、この中間層は様々な酸化物が混合した不均一に波打つ複数の層から構成されていることを示した。さらにこのような圧延接合したクラッド板を 300 から 500 °C の温度で熱処理すると、中間層が、主に Al アモルファス酸化物からなる厚さ約 20 nm の均一な層と、その内部に島状に分離した α -Fe へと再構成されることを明らかとした。さらに 500 °C 以上の温度で熱処理すると、接合界面には θ -FeAl₃ や η -Fe₂Al₅ の金属間化合物が 10 μ m 前後の厚さで生成し、金属間化合物とアルミニウムとの間で界面はく離を生じることを示した。この中間層は、両金属のバインダーとしての役割と同時に、500 °C 以下での熱処理における異種金属元素の相互拡散障壁としての役割を有すること、その結果、熱処理により中間層が上記したように再構成され接合強度が増大したと推察した。

第4章では、温間圧延法で接合した 16Cr ステンレス鋼とアルミニウムとの二層クラッド板を 300 から 500 °C で熱処理した場合にピール強度が増大する現象について、ピール試験後の破壊面に注目して解析した。その結果、圧延接合したままのクラッド板では中間層破壊が支配的に起こり、熱処理したクラッド板ではアルミニウム母材破壊が支配的に起こることを明らかとした。しかしながら、アルミニウム母材の破壊強度が熱処理温度の上昇とともに低下するにもかかわらず、実測されたピール強度は、300 から 500 °C の熱処理によって増大することから、ピール強度発現機構をアルミニウム母材の破壊強度から理解することはできない。そこで、ピール試験を途中止めしたサンプルの開口先端部における変形状態を詳細に観察した結果、熱処理したクラッド板ではアルミニウム母材が軟化するため、より低い応力で

伸びを伴って塑性変形するようになり、その結果、ピール試験の引き剥がし力によりアルミニウムの塑性変形領域が広がり、単位幅あたりで評価したピール強度が増大すると推察した。

第5章では、薄板の金属クラッド板の接合強度を把握し評価するための手法について整理したうえで、第4章で推定したピール強度発現機構について検証実験を行った。試作したボタン圧延接合材を用いて測定した接合界面における真の接合強度、すなわち単位面積あたりの接合強度は、ピール強度の挙動とは異なり、圧延接合まま材に比べて、熱処理の後でもほとんど変化せず、むしろ低下する傾向が見られた。本実験結果から、第4章で推定したピール強度発現機構の妥当性が確認された。

6.2 本研究の総括と今後の課題

本研究は、金属クラッド板における異種金属接合界面の構造を理解し、接合強度との関係ならびに熱処理による影響を明らかにすることを目的として行ったものである。本研究をとおして得られた知見は、今後さらに、金属クラッド板の接合条件を最適化する検討や、新たな構成材料を採用した場合の接合可否の予測、さらには実使用を考慮した熱処理条件の影響を明らかにするうえで、重要な知見となる。

本研究で取り扱った金属クラッド板では、母材アルミニウムとして JIS H 4000 に規定された工業用純アルミニウムを用いているが、近年では、当該クラッド板の強度を増大させたり、電気抵抗率を調整したりする目的から、アルミニウム合金を母材としたクラッド板の開発要求が高まっている。アルミニウム合金の素材表面に形成された酸化被膜には、種々の析出相がみられるなど純アルミニウムとは異なる特徴があり、クラッド接合界面の中間層構造に与える影響や、その適正な接合条件にも大きな変化が予想される。そこで、本研究で確認された中間層とは異なるような中間層構造を持つ組み合わせについて、その接合界面の微細構造を明らかとし、得られた知見から効率的な接合技術を構築し、これまでの金属材料には無い、新たな機能を有する金属クラッド板の開発に貢献したい。

謝 辞

本研究は，金沢大学大学院自然科学研究科の潮田浩作客員教授による，熱心で暖かなご指導のもと遂行し得たものであり，ここに深く感謝の意を表します．

また，有益なるご助言，ご教示をいただきました金沢大学大学院自然科学研究科の門前亮一教授，石川和宏教授，下川智嗣教授，渡邊千尋教授に厚く御礼申し上げます．

本研究は，旧住友金属株式会社総合技術研究所のステンレス・チタン研究開発部，旧株式会社住友金属直江津の製造部，ならびに新日鐵住金株式会社技術開発本部鉄鋼研究所のチタン・特殊ステンレス研究部において行った研究成果をまとめたものである．元上司である藤井秀樹博士（現東邦チタニウム株式会社常務取締役），ならびに現上司である寺岡慎一博士には，日頃の研究指導とともに，本稿の作成に対する励ましと多大な便宜を図っていただきました．

また，長期にわたる本研究の過程で，多くの方からの恩恵にあずかっています．

元上司である新日鐵住金株式会社の黒田篤彦博士には，独自製品の開発ならびに圧延接合条件の解析手法開発について研究を後押しいただくとともに，細部にわたるご意見をいただきました．現新日鐵住金株式会社鹿島製鉄所設備部の木村義久主幹には，共同研究者として有限要素法による圧延接合解析ならびに効率的な圧延接合条件の開発において多大なご協力をいただきました．

元上司である前田尚志博士（現日鉄住金テクノロジー株式会社）には，TEMによる接合界面の微細構造解析について示唆をいただくとともに，その後の研究を指導していただきました．旧住友金属テクノロジー株式会社の花房謙二氏，ならびに日鉄住金テクノロジー株式会社富津事業所の中村主志主幹には，異種金属接合材のFIB試料作成にご尽力いただくとともに，TEM解析結果の解釈について有益なご助言をいただきました．また日鉄住金テクノロジー株式会社尼崎事業所の関専門主幹には，Al-Fe拡散対の相互拡散挙動に関する数値計算についてご指導いただくとともに，細部にわたるご支援をいただきました．

本研究とその成果は，社内外を含めた諸先輩方，同僚，後輩の方々から得た多くのご支援なくしては成し得ないものでした．特に，新日鉄住金株式会社技術開発本部鉄鋼研究所のチタン・特殊ステンレス研究部で，試作試験や評価試験の実行に関わる研究試験班の方々，また同じく，新日鉄住金株式会社直江津製造所の2CM圧延職場をはじめ，関係会社を含めたクラッドコイル製造に関わる製造ラインの方々に，敬意とともに感謝の意を表したいと思います．

本研究をまとめるにあたり，再度これらの方々のご協力を実感し，紙面を借りて厚く御礼申し上げます．

そして，研究遂行のあいだ日常生活の支えとなってくれた妻と家族に感謝します．

2019 年 1 月

奥井 利行